



Conception et réalisation de systèmes de contrôle non destructif par mesure du rayonnement nucléaire et métrologie associée pour la quantification des radionucléides contaminant les déchets et les procédés de l'industrie nucléaire.

N. Saurel

► To cite this version:

N. Saurel. Conception et réalisation de systèmes de contrôle non destructif par mesure du rayonnement nucléaire et métrologie associée pour la quantification des radionucléides contaminant les déchets et les procédés de l'industrie nucléaire.. Physique Nucléaire Expérimentale [nucl-ex]. Université Blaise Pascal - Clermont-Ferrand II, 2013. tel-00826891

HAL Id: tel-00826891

<https://theses.hal.science/tel-00826891>

Submitted on 28 May 2013

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

UNIVERSITÉ CLERMONT II - BLAISE PASCAL
U.F.R. Sciences et Technologies

**HABILITATION A DIRIGER
DES RECHERCHES**

Présentée par

Nicolas SAUREL

Docteur d'Université

Conception et réalisation de systèmes de contrôle non destructif par mesure du rayonnement nucléaire et métrologie associée pour la quantification des radionucléides contaminant les déchets et les procédés de l'industrie nucléaire

Soutenue publiquement le 11 mars 2013, devant la commission d'examen :

M.	J. COLLOT	Rapporteur
M.	P. FORCE	Examineur
M.	J.E. GROETZ	Rapporteur
M.	G. MONTAROU	Rapporteur
M.	B. PEROT	Président du jury

Résumé

La mesure nucléaire non destructive doit apporter des réponses aux grands enjeux de l'industrie nucléaire que sont la sûreté des installations nucléaires et la santé, l'impact environnemental, la performance, la fiabilité et la maîtrise des coûts. Elle a pour but de caractériser, sans le dégrader, un objet, contaminé par un ou des radionucléides. Qu'elle soit active ou passive, elle est déployée pour la quantification des radionucléides présents dans les effluents, les déchets liquides et solides, l'évaluation des masses de matières en rétention. Elle est aussi déployée de manière qualitative et/ou quantitative pour le suivi de procédé. Dans ce cas, elle revêt un caractère de contrôle de qualité de production mais la plupart du temps elle constitue un caractère de surveillance du respect du référentiel autorisé de fonctionnement de l'unité de production nucléaire. Les résultats issus de ces mesures alimentent directement le suivi matière et les inventaires radiologiques des produits nucléaires. La notion d'inventaire radiologique est notamment liée aux exutoires pour ce qui concerne les déchets tandis que la notion d'inventaire matière est liée au suivi des matières nucléaire des unités de criticité. L'objectif est donc de donner une valeur quantitative et/ou qualitative avec les incertitudes associées, détaillées et chiffrées, sur les radionucléides composant la contamination de l'objet. L'objet contaminé peut être de différentes formes géométriques, de taille et de composition physico-chimique. Pour être opérationnelle, la mesure nucléaire doit intégrer les appareils, les actions de mesure, l'établissement et l'utilisation des méthodologies associés. Je retrace, dans ce mémoire d' HDR, les principaux travaux de recherche et développement que j'ai mené ou auxquels j'ai participé pour répondre à ces objectifs. Ces travaux portent sur la métrologie des rayonnements nucléaires et sont appliqués sur trois principaux types de mesures que sont la spectrométrie gamma, la spectrométrie alpha et le comptage neutronique passif ou actif.

Mots clés : mesure nucléaire, métrologie, spectrométrie gamma, spectrométrie alpha, comptage neutronique passif, mesure neutronique active.

Abstract

Design and manufacturing of nuclear non destructive measurement systems and coupled metrology in order to quantify the radionuclides contaminating the wastes and the processes of the nuclear industry

The non destructive nuclear measurement has to provide responses for the main challenges of the nuclear industry such as nuclear facility safety, health, environmental impact, performance, reliability and cost control. The goal of the non destructive nuclear measurement is to characterize, without any deterioration, an object contaminated by one or more radionuclides. The passive or active nuclear measurement are utilized for quantifying the radionuclides in the effluents, the liquid and solid wastes and the nuclear material hold-up. It is also deployed for the process control. In this case, it is a standard production control but, the most of the time, it controls the validity of the safety domain of the production unit. The results of these measurements are used to establish the radiological inventory or the nuclear material balance. The radiological inventory is needed for the nuclear wastes outlets while the nuclear material balance is needed to follow through with the criticality units. The most important objective is to give the quantitative and/or qualitative value and its uncertainty are confident of the radionuclides contaminating the object. This contaminated object might be of different geometrical shapes, sizes or physico-chemical compositions. In order to be efficient, the non destructive nuclear measurement has to include the apparatus, the measurement actions, the settings and the use of the coupled methodologies. I relate, in this memoir, my main research and development works that I drove or in which I took part for achieving these goals. These works are about the metrology of nuclear radiations and are used in three main types of measurement which are the gamma spectrometry, the alpha spectrometry and the passive or active neutron counting.

Keywords: nuclear measurement, métrology, gamma spectrométry, alpha spectrométry, passive neutron counting, active neutron counting.

Table des matières

Résumé	i
Table des matières	v
Table des figures	vii
Avant-propos et contexte	1
1 Introduction globale à la carrière	5
1.1 Début de carrière : résumé du travail de thèse	5
1.2 Parcours professionnel	8
1.3 Positionnement des travaux	10
1.3.1 Cadre général	10
1.3.2 Métrologie des moyens de mesure nucléaire non destructive .	16
1.4 L'évaluation de l'activité radiologique des colis à caractériser	28
1.4.1 Les méthodes destructives	31
1.4.2 Les méthodes non destructives	32
2 Synthèse des activités de recherche	37
2.1 Conception de poste de mesure neutronique avec source d'interro- gation	37
2.1.1 PACCMAN	37
2.1.2 Dispositif CELINA	47
2.1.3 Dispositif VVO	52
2.2 Conception de poste de mesure neutronique passive par coïncidence	59
2.3 Métrologie des comptages neutronique par coïncidence	61
2.3.1 MCMF	61
2.3.2 Poste de mesure neutronique passive du LEFCA	63
2.4 Métrologie de la spectrométrie gamma	70
2.4.1 Caractérisation de diodes germanium	70

TABLE DES MATIÈRES

2.4.2	Validation du logiciel de traitement de spectres	82
2.4.3	Innovation dans le traitement de spectres gamma	97
2.4.4	Dispositif MADAGASCAR	101
2.5	Métrologie de la spectrométrie alpha	104
3	Activités d'animation et d'encadrement de la recherche	113
3.1	Travaux encadrés	113
3.1.1	Thèses et postdoctorat	113
3.1.2	Diplôme de recherche technologique, stages	115
3.2	Brevets	121
3.3	Publications	121
3.3.1	Notes techniques internes CEA	121
3.3.2	Publications	124
3.3.3	Posters	125
3.3.4	Activités de comité de lecture	126
3.4	Expertises scientifiques	126
3.4.1	Groupe de travail « suivi matière »	126
3.4.2	Groupe de normalisation AFNOR	126
3.4.3	Groupe de travail CETAMA	127
3.5	Administration de la recherche	128
3.5.1	Animation du laboratoire de Mesures Nucléaires et Expertises	128
3.5.2	Accréditation COFRAC	129
3.5.3	Réponses aux nouveaux besoins de mesures sur le centre de Valduc	130
3.5.4	Gestion des collaborations	131
4	Bilan et perspectives de mon activité d'ingénieur chercheur	133
	Bibliographie	139

Table des figures

1.1.1	Schéma de principe de la photofission	6
1.1.2	Reconstruction tomographique de l'activité contenue dans un colis béton de grand volume	7
1.1.3	Moyen optimisé de tomographie par interrogation photonique active	8
1.3.1	Photographies de divers objets contaminés à caractériser	13
1.3.2	Radiographies X de fûts de déchets technologiques nucléaires . . .	13
2.1.1	Allure temporelle du signal en mesure active des neutrons prompts	39
2.1.2	Vue du dispositif PACCMAN accosté (coupe médiane)	40
2.1.3	Nouvelle disposition des blocs détecteurs vis-à-vis du pot de déchets	44
2.1.4	Ancienne disposition des blocs détecteurs vis-à-vis du pot de déchets	45
2.1.5	Localisation de l'émission neutronique par un bloc détecteurs hélium 3	45
2.1.6	Performance de la localisation par tomographie	46
2.1.7	Amélioration finale de la reconstruction tomographique	46
2.1.8	Vue du dispositif PROMETHEE 6	48
2.1.9	Vue de dessus du dispositif CELINA intégré dans PROMETHEE .	48
2.1.10	Vue de face du dispositif CELINA intégré dans PROMETHEE . .	49
2.1.11	Vue en coupe du dispositif CELINA	50
2.1.12	Poste de comptage neutronique VVO	53
2.1.13	Schéma de principe de la correction de l'étalonnage en fonction de la matrice. Etape 1 : détermination du taux de transmission du fût inconnu. Etape 2 : détermination de la masse volumique équivalente vinyle du fût inconnu. Etape 3 : détermination du coefficient d'étalonnage correspondant à la masse volumique équivalente vinyle déterminée grâce au taux de transmission du fût inconnu	54
2.1.14	Photographies des configurations de transmission étudiées	55

TABLE DES FIGURES

2.1.15	Courbes de correction obtenues par simulations MCNP pour différentes configurations expérimentales	56
2.1.16	Les carrés représentent les taux de transmission relevés expérimentalement sur les 4 matrices étalons en PVC du laboratoire. Les 3 séries de 4 points correspondent aux 3 configurations testées appliquées à ces 4 matrices. Les 3 courbes sont celles issues des modélisations MCNP	56
2.1.17	Schéma du fût étudié avec la source de plutonium en bas du canal d'insertion	58
2.1.18	Principe d'exploitation du comptage neutronique sur l'appareil VVO	59
2.2.1	Future boîte à gants mesure de la salle de casse de Valduc	60
2.3.1	Vues du coffre neutrons du LEFCA	64
2.3.2	Estimation de l'incertitude type de position par méthode Monte-Carlo	66
2.3.3	Résultat final par méthode Monte-Carlo. Les 3 droites représentées sont respectivement, en partant du bas, la droite extrême correspondant à la borne inférieure de l'incertitude, la droite d'étalonnage, donnant la correspondance entre le taux de comptage et la masse quantifiée, la droite extrême correspondant à la borne supérieure de l'incertitude	68
2.3.4	Coffre neutrons après modifications. Les modifications sont le retrait de la paraffine et du cadmium qui étaient présents à l'intérieur du socle ci-dessus	68
2.3.5	Estimation de l'incertitude type de position par méthode Monte-Carlo. Cette incertitude type est évaluée à partir de la distribution de probabilité ci-dessus. L'incertitude type est égale à 95% de cette distribution. Les bornes à 2,5% inférieures et supérieures sont représentées par les pointillés rouges	69
2.4.1	Radiographie d'une diode Germanium de type BeGe	72
2.4.2	Détecteurs coaxiaux de type N, P et cristal de type BEGe	72
2.4.3	Lignes de champs électriques dans un cristal de Germanium Hyper Pur de type BeGe	73
2.4.4	Représentation schématisée des efficacités intrinsèque et géométrique	74
2.4.5	Mesure sur source étalon	74
2.4.6	Banc de caractérisation – vue de côté	77
2.4.7	Banc de caractérisation – vue de dessus	77
2.4.8	Utilisation du banc à courte distance	78
2.4.9	Utilisation du banc à longue distance	78

2.4.10	Cotes nécessaires pour la modélisation du détecteur. La partie verte du graphique représente la partie active du capteur (cristal de germanium), la partie mauve le support du cristal germanium et la partie bleue le capot externe du détecteur avec la fenêtre carbone en face avant	79
2.4.11	Modèle de détecteur GeHP « équivalent » modélisé	80
2.4.12	Diagramme de l'ajustement du diamètre du modèle numérique du détecteur GeHP	81
2.4.13	Diagramme de l'ajustement de l'épaisseur du modèle numérique du détecteur GeHP	83
2.4.14	Spectre gamma d'une source étalon d'euporium152 entre 250 et 450 keV	84
2.4.15	Exemple de multiplet et de singulet	85
2.4.16	Différence de déconvolution entre le traitement automatisé du logiciel du commerce et celui optimisé par l'intervention de l'opérateur	86
2.4.17	Exemple de fond sinusoïdal considéré pour la validation. Le profil des pics est constitué d'un multiplet de 2 pics (entre les canaux 15 et 25) et d'un singulet dont le centroïde est le canal 30	89
2.4.18	Schéma directeur de la validation. La première étape est la réalisation du plan de Taguchi. La deuxième étape consiste à valider séparément la déconvolution des multiplets et la déconvolution des singulets. La réalisation de la deuxième étape permet la validation complète de SINBAD	90
2.4.19	Synthèse de la contribution de chaque facteur à la réponse	91
2.4.20	Fonds choisis pour la suite de l'étude. Les pics à déconvoluer sont générés entre les canaux 220 et 260, là où la pente varie le plus d'un fond à l'autre. Le fond bleu possède la pente la plus importante, le fond vert la pente la plus faible et le fond rouge la pente moyenne	92
2.4.21	Illustration du rapport signal sur bruit d'un pic. Le RSB est défini par $\frac{(S+B)}{B}$ où B est le fond sous le pic (calculé sur l'intervalle $\pm 3\sigma$) et $S + B$ est la somme du contenu des canaux sur l'intervalle $\pm 3\sigma$	93
2.4.22	Configuration de pics permettant d'obtenir DKVMAX. Le principe est d'augmenter l'écartement entre les pics jusqu'à ce que l'aire hachurée représente moins de 1% de l'aire totale du petit pic, notée S2. Dans l'exemple, l'écartement entre les 2 pics est de $4,5\sigma$	94

2.4.23 Représentations 2D du modèle de $\ln(\Delta S2)$ en fixant DKV à 3 valeurs particulières : le minimum (graphe du haut), la moyenne (graphe du milieu) et le maximum (graphe du haut). Plus l'écartement entre les pics augmente, plus le domaine à 5% devient important, donc plus $\Delta S2$ diminue. L'abscisse de chaque graphique représente S21, l'ordonnée représente le RSB	96
2.4.24 Principe de fonctionnement de la routine de traitement des résultats SINBAD	97
2.4.25 Détermination du rendement de détection à partir des points de rendement relatif calculés grâce aux pics du spectre. Les points sont ajustés par une fonction spécifique et translatés du facteur A. Le résultat de ces opérations aboutit à la valeur du rendement de détection	100
2.4.26 Photographie de MADAGASCAR. Le « détecteur isotopie » sert à déterminer l'isotopie plutonium ou uranium présente dans le fût à caractériser. La « source d'interrogation » est liée avec le « détecteur quantification ». Cet ensemble permet la quantification des radionucléides émetteurs gamma présents dans le fût à caractériser. Les fûts suivent le chemin tracés par les convoyeurs à rouleaux . .	103
2.5.1 : Méthode actuelle de mesurage de l'activité alpha	104
2.5.2 Modélisation MCNPX d'une chambre à grille	106
2.5.3 Spectres obtenus par modélisation et expérimentation	106
2.5.4 Spectre modélisé et expérimental d'un distillat	107
2.5.5 Géométrie de la chambre alpha avec détecteur de type PIPS à l'échelle 2/3	108
2.5.6 Spectres obtenus par modélisation et expérimentation avec un capteur PIPS dans la configuration de mesure de la figure 2.5.5	109
2.5.7 Modélisation de l'épaisseur de la lame de liquide nécessaire pour la spectrométrie	110
2.5.8 Évolution du rapport bruit/signal en fonction de l'énergie. Les données sont relatives à la mesure de bruit de fond dans l'eau avec un capteur PIPS	111
2.5.9 Schéma de principe de mesurage et de spectrométrie de l'activité alpha in situ	112

Avant-propos et contexte

Ce mémoire compile et ordonne les dix années, depuis 2002, de mes activités de recherche post-doctorales. Mon souhait est de faire un document retraçant et décrivant mon parcours ainsi que mes principales contributions utiles à la « communauté scientifique ». Ce document n'a donc pas vocation à être un rapport technique, académique par essence, mettant en exergue un point technique ardu particulier, mais bien un exposé le plus exhaustif possible de mon travail de recherche et développement dont le but est d'améliorer l'existant et l'état de l'art. Le but affiché est de permettre d'établir le bilan de ces années de recherche et développement. Ainsi, je me suis efforcé de répertorier dans ce document tous les éléments justificatifs et objectifs pour évaluer ma capacité à diriger des recherches. J'espère que la lecture de ce document reflétera correctement ces intentions.

Avant de débiter ce mémoire, centré sur mes activités de recherche et développement post doctorales, je vais revenir rapidement sur mes travaux précédents mon doctorat. Ce sont ces travaux qui m'ont déterminé à m'investir dans l'instrumentation et la métrologie nucléaire. Ma thèse de doctorat a débuté en février 1999 au Commissariat à l'Energie Atomique de Saclay et a été soutenue en février 2002. Compte tenu du rôle joué par mon doctorat sur mon parcours professionnel, je préciserai rapidement, en tout début de mémoire, pour introduire mon parcours professionnel, les éléments marquants de ma thèse. Personnellement, ce doctorat a été le prolongement, la « suite logique », d'une aspiration à concevoir ou à créer de la connaissance, des produits, des procédés, des méthodes et des systèmes nouveaux et à gérer les projets associés dans le domaine des interactions rayonnement matière. Cette aspiration a pris naissance au cours de mon année de maîtrise, réalisée à l'université de Montréal¹. Deux travaux, un travail pratique et un stage, m'ont révélé ma passion pour la mise en œuvre et la quantification des grandeurs associées au traitement et à l'interprétation de signaux analogiques ou numériques. Le travail pratique était une étude d'extraction et d'identification d'étoiles d'une image visible acquise par une caméra CCD. Le stage portait sur la détermination de la vitesse des électrons dans une chambre à fils. Le déclenchement de l'acqui-

1. Québec, Canada

sition était donné par le passage de muons cosmiques verticaux sélectionnés par deux scintillateurs plastiques placés respectivement au dessus et au dessous de la chambre à fils. Le stage a consisté à mettre en place l'ensemble de l'expérimentation : couplage des scintillateurs avec l'embase, choix et chaînage des modules NIM² analogiques nécessaires, définition de la méthodologie de quantification de la durée de collecte des électrons, etc. Ces travaux pratiques m'ont conforté dans mon projet professionnel de devenir ingénieur-chercheur et m'a surtout incité à poursuivre dans cette thématique. C'est ainsi que j'ai effectué mon DEA³ à l'université Blaise Pascal de Clermont-Ferrand, option production et utilisation des rayonnements. Durant cette année, je me suis servi de ma période de stage pour compléter mon expérience dans les interactions rayonnement matière par la spectrométrie gamma haute résolution. J'ai effectué ce stage à l'université de Colombie Britannique⁴ auprès du cyclotron TRIUMF. Le travail consistait à traiter et exploiter les spectres gamma acquis par des spectromètres germanium hyper-purs couplés à un dispositif anti-Compton. Ces spectres gamma étaient la résultante des interactions de pions sur des cibles d'aluminium et de silicium. L'objectif était la détermination des états excités des noyaux cibles. Enfin, avant mon service militaire, de façon volontaire, j'ai poursuivi ma pratique par un stage de deux mois, à l'université d'Édimbourg⁵. Durant, ce stage j'ai défini et optimisé une chaîne de mesure de spectrométrie alpha, basé sur un capteur silicium, sous vide avec fenêtre d'entrée en mylar. Cette chaîne de mesure était une chaîne test pour une intégration éventuelle au futur détecteur ATLAS du CERN. Toutes ces expériences ont consolidé mon projet professionnel, être ingénieur chercheur et m'ont préparé pour mon doctorat.

Une fois mon doctorat obtenu, j'ai finalisé ce projet professionnel en intégrant le CEA, à Cadarache, en tant qu'ingénieur-chercheur, sur la même thématique que celle de mon doctorat, à savoir la caractérisation des colis de déchets nucléaires. Ce métier d'ingénieur-chercheur en mesure nucléaire, que je pratique toujours, me permet de contribuer au développement des connaissances, d'améliorer la technique et de conduire les projets de mesures nucléaires associés. Ce mémoire retrace d'abord mon parcours professionnel en débutant par un résumé de mes travaux de thèse de doctorat puis mon parcours professionnel depuis la soutenance de ma thèse jusqu'à la rédaction de ce mémoire. Ce descriptif est suivi par le positionnement de mes travaux dans le paysage de la recherche et plus particulièrement dans celui de l'industrie nucléaire. Cette partie explique les objectifs recherchés, les enjeux liés à la mesure nucléaire. Cet ensemble constitue le chapitre 1 du mémoire. Le

2. Nuclear Instrumentation Module : standard définissant les spécifications mécaniques et électriques utilisés en physique nucléaire et en physique des particules

3. Diplôme d'Études Approfondies, actuellement Master 2 recherche

4. Colombie Britannique, Canada

5. Écosse, Royaume-uni

chapitre 2 fait le bilan de mes activités d'ingénieur-chercheur au travers d'une sélection d'études techniques que j'ai réalisées, que j'ai dirigées ou auxquelles j'ai contribué activement. Le chapitre suivant, le chapitre 3, décrit mes activités d'encadrement et d'administration de la recherche. Enfin, le bilan de mes activités d'ingénieur-chercheur conclut ce mémoire.

Chapitre 1

Introduction globale à la carrière

1.1 Début de carrière : résumé du travail de thèse

Comme évoqué dans les pages précédentes, mes activités de recherche ont toutes comme fil conducteur le déploiement et la mise en œuvre d'appareils de mesure ainsi que la quantification des grandeurs associées au traitement et à l'interprétation de signaux analogiques ou numériques générés par ces appareils. Ce fil d'Ariane prend sa source dans mon projet de doctorat : « Tomographie des actinides par photofission dans des colis de déchets radioactifs de grand volume »[24].

La problématique liée à ce projet est celle de la gestion des déchets radioactifs et plus particulièrement celle de leur caractérisation radiologique, c'est à dire l'identification des radionucléides présents dans les déchets et la connaissance robuste de l'activité de chaque radionucléide en présence. L'Agence Nationale pour la gestion des Déchets RAdioactifs (ANDRA) regroupe dans ses centres de stockage en activité les déchets radioactifs respectant les exigences d'acceptation de ces centres. Toutefois, l'ANDRA se doit, afin de garantir à l'Autorité de Sûreté Nucléaire le respect de la réglementation et des exigences liées à l'exploitation des sites de stockage, de veiller à la conformité des colis stockés sur ses sites. Pour cela, elle exerce une surveillance continue des colis qui lui sont expédiés. Cette surveillance est exercée notamment par l'intermédiaire de contrôles nucléaires non destructifs dont le but est de contrôler la déclaration d'activités et d'identification des radionucléides présents dans le colis inspecté. C'est pour répondre à cet objectif sur un type de colis particulier de déchet que le sujet de thèse a été monté. Ce doctorat, qui s'est réalisé au Commissariat à l'Énergie Atomique et aux énergies alternatives, sur le site de Saclay, a été cofinancé par l'ANDRA. J'ai réalisé mon étude au sein de la Direction de la Recherche Technologique (DRT) au Département de l'Instrumentation et de la Métrologie des Rayonnements Ionisants (DIMRI), au sein du Service d'Instrumentation et d'Application des Radioéléments dans le laboratoire

de Modélisation et de Mesures Nucléaires.

Cette thèse s'inscrivait dans la continuité de thèses précédentes [15, 12] qui avaient démontré la faisabilité et l'apport d'une telle méthode et instrumentation à la caractérisation de colis de déchets radioactifs bétonnés de grand volume (plusieurs mètres cubes). Toutefois, il restait à valider à la fois les moyens et la méthodologie de mesure. C'est ce que je me suis attaché à réaliser au cours de ma thèse. Pour restituer le contexte, la figure n°1.1.1 montre le principe de l'interrogation photonique active.

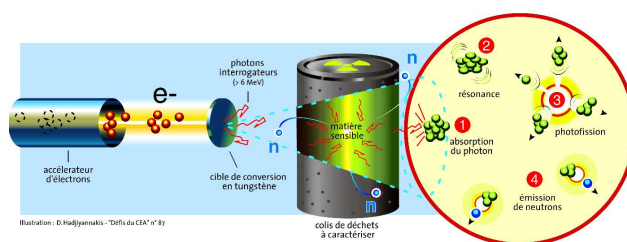


FIGURE 1.1.1: Schéma de principe de la photofission

L'idée de départ est, puisque les particules (alpha, neutrons) et rayonnements (photons) potentiellement émis spontanément par les radionucléides présents dans le colis de déchets ne peuvent franchir en quantité suffisante l'écran constitué par la matrice (béton dans le cadre de cette étude), alors grâce à l'utilisation d'une méthode dite « active », on « interroge » le colis avec un flux très intense et de pouvoir de pénétration élevé dans la matrice pour provoquer des réactions induites sur les radionucléides présents. Ce sondage présente l'avantage de la densité particules/rayonnements par unité de matière, nucléaire ou non et de générer une densité de particules/rayonnements induits suffisante pour obtenir un signal exploitable. Il présente surtout comme avantage de générer des particules au pouvoir de pénétration plus élevé dans la matrice constitutive du colis. L'utilisation d'un flux intense oblige de pulser le flux interrogateur et de détecter les particules d'intérêt entre chaque pulse. Une fois le principe général de la méthodologie établi et validé [15], il a été testé sur une maquette de colis ainsi que la faisabilité du couplage avec une technique de localisation [12]. La localisation est rendue possible par la forte directivité du flux de photons interrogateur. Ce flux de photons est obtenu par rayonnement de freinage : un accélérateur de type LINAC délivre un flux d'électrons sur une cible de conversion en tungstène, qui par rayonnement de freinage, produit le faisceau de photons requis pour l'expérience.

Mon travail de thèse a principalement porté sur la définition, l'optimisation, l'évaluation des performances et la validation de cette technique innovante. Pour

la première fois, une tomographie complète d'une maquette de colis béton a été réalisée avec localisation et quantification de la matière présente dans la maquette par interrogation photonique active et comptage des neutrons retardés. Cette matière était un étalon d'uranium 238. Pour arriver à ce résultat, j'ai défini et réalisé un collimateur en plomb pour focaliser le faisceau de photons sur le colis et ainsi définir une taille de voxel¹ optimisée en fonction de la taille du faisceau, du flux de photons délivré, du nombre de particules secondaires générées ainsi qu'en fonction de la configuration de la maquette de colis, représentative d'un colis de déchets radioactifs. J'ai pu établir les performances, en terme de limite de détection calculée voxel par voxel. La figure n°1.1.2 présente une image 2D obtenue sur le colis maquette avec une masse de 484g d'uranium 238 présente dans deux voxels différents. L'image de gauche est l'image de référence tandis que l'image de droite est l'image obtenue à partir des acquisitions.

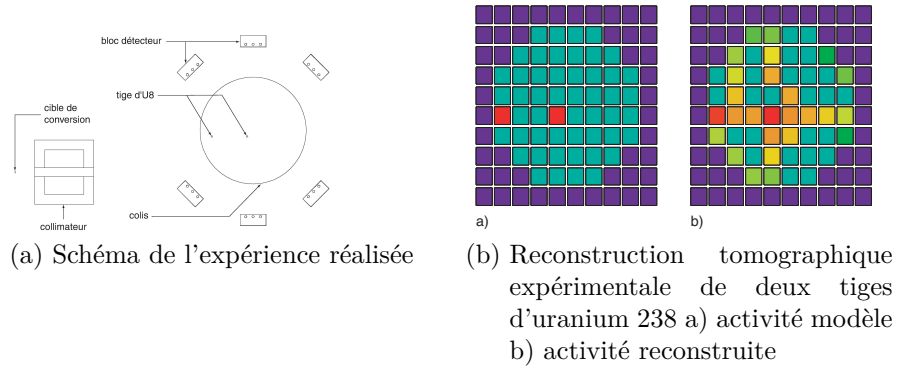


FIGURE 1.1.2: Reconstruction tomographique de l'activité contenue dans un colis béton de grand volume

J'ai aussi proposé un moyen tomographique complet optimisé. Ce moyen est représenté sur la figure 1.1.3

Pour obtenir ces avancées, je me suis appuyé sur de nombreuses modélisations Monte-Carlo avec le code de calcul de transport 3D de particules, MCNP². De

1. VOLUME ELement : volume unitaire contenant l'information recherchée
2. Monte Carlo N-Particle transport code : Code de calcul 3D de simulation numérique basé sur la méthode de Monte-Carlo pour modéliser le transport de particule

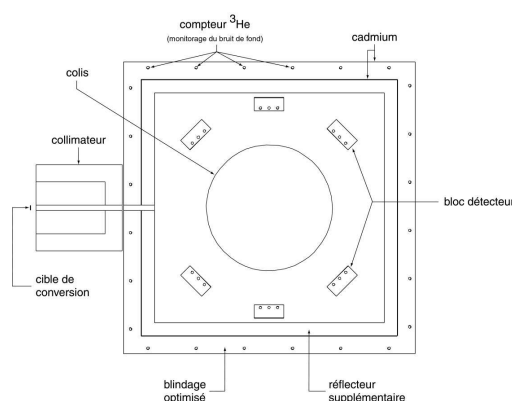


FIGURE 1.1.3: Moyen optimisé de tomographie par interrogation photonique active

plus, pour limiter les artefacts principalement dus dans notre problématique à la forte influence sur la mesure du bruit issu de l'environnement ainsi que du peu de voies de mesures disponibles, j'ai optimisé et mis en œuvre un algorithme de reconstruction tomographique basé sur l'inférence Bayésienne et l'optimisation par maximum de vraisemblance.

Ces travaux ont fait l'objet d'une présentation orale au congrès IEEE de Lyon en 2000 [29][28], d'un article dans la revue NIM A [24] et d'une présentation orale aux journées plénière de la Commission d'ÉTABlissement des Méthodes d'Analyses (CETAMA) en mars 2002 [25]. Ces dernières références sont partie de la bibliographie de ce mémoire mais ne sont pas comptabilisées comme publications pour la présente habilitation à diriger des recherches.

1.2 Parcours professionnel

J'ai soutenu ma thèse en 2002 et la même année j'ai été embauché au Commissariat à l'Énergie Atomique et aux énergies alternatives sur le site de Cadarache, à la direction de l'Énergie Nucléaire (DEN), au département de Technologie Nucléaire au sein du Laboratoire de Mesures Nucléaires (LMN). Ce laboratoire, d'une trentaine de personnes, est le résultat du regroupement de deux laboratoires, un laboratoire de développement de méthodes de mesures et un laboratoire de conception de systèmes de mesures. Il est reconnu comme pôle de compétence en termes de mesures nucléaires au niveau du Commissariat à l'Énergie Atomique et aux énergies alternatives. Il travaille pour les autres unités du CEA qui ont des besoins spécifiques de recherche pour des systèmes du futur, toujours en termes de mesures nucléaires. Il travaille aussi au développement et à l'intégration de l'innovation pour les usines de retraitement du combustible de La Hague, de Rokkasho Mura ou futures. Il participe aussi ponctuellement à des travaux de recherche et

développement au sein de projets de l'AIEA ou européens. Au sein de cette unité, j'ai participé pendant 3 ans aux activités suivantes : définition, optimisation, réalisation et mise en œuvre d'appareils et de méthodes de mesures innovantes en interne CEA. C'est au sein de ce laboratoire que j'ai acquis et développé mon expérience en termes de mesures neutroniques passives et actives de colis de déchets nucléaires. Cette expérience porte sur le dimensionnement, la conception et la mise en service d'appareils de mesure pour le contrôle non destructif de colis de déchets radioactifs. Au sein du LMN, j'ai travaillé sur les moyens de mesures et méthodologies associées :

- neutroniques actives (COQUINA, PACCMAN, CELINA) mettant en œuvre un générateur de neutrons de type GENIE 16 de la société SODERN, et la détermination de la teneur en bore dans les plaques de combustibles mettant en œuvre une source de transmission,
- neutronique passives (Salle de Casse de Valduc, MCMF, MAGENTA, LEFCA),
- de validation du taux de combustion de combustibles usés avant leur cisailage (RECIF),
- la mesure de combustibles irradiés appliquée aux garanties internationales et à la non prolifération (dispositif SMOPY),
- de retour d'expérience sur le contrôle nucléaire de procédé (CNP) déployé à l'usine de La Hague.

Ces actions seront explicitées plus en détail dans la synthèse de mes activités de recherche. Au sein du LMN, j'ai encadré deux stagiaires de niveau master 1 ainsi que deux ingénieurs chinois du China Institute of Atomic Energy (CIAE) et invités par l'AIEA.

Après trois années passées au sein de ce laboratoire, j'ai effectué une mobilité géographique, au sein du CEA, qui m'a permis d'intégrer la Direction des Applications Militaires (DAM) sur le site de Valduc. J'ai intégré un nouveau laboratoire, tout juste créé sur le site, le Laboratoire de Mesures sur Déchets nucléaires et Expertise (LMDE). Sur ce site mes activités portaient, et portent toujours et comme à Cadarache, sur la définition et la mise en service de moyens de contrôle non destructifs par mesures nucléaires. Toutefois, à la différence des fonctions que j'occupais à Cadarache, les appareils de mesures mis en service sont dédiés aussi bien à la caractérisation radiologique des colis de déchets que des matières radioactives en rétention dans les procédés de fabrication présents sur le site de Valduc. Les techniques utilisées sont aussi plus larges puisque mon expérience s'est enrichie des techniques de spectrométrie gamma et alpha. Cette expérience s'est aussi étoffée par la diversité des natures physico-chimiques des objets caractérisés (liquide, solide, pulvérulents,...) et par la géométrie de ces objets (cylindrique allant du flaconnage de 30 ml au fût de type pétrolier de 200 litres, parallélépipédique allant de la boîte plastique de 10 litres à la boîte à gants procédé). Elle s'est aussi traduite par le

fait que je pilote les projets de mesures depuis la conception jusqu'à la mise en service et le suivi du fonctionnement en routine de l'appareil de mesure, ce qui fait que j'ai étendu mon périmètre d'étude à la validation de l'appareil de mesure pour alimenter l'amélioration continue liée aux enjeux de cet appareil. Mes principales activités de recherche portent sur :

- la validation des méthodes de mesure nucléaire non destructive par plan d'expérience (complet, carré latin),
- la détermination de la réponse spatiale de détecteur germanium (caractérisation de détecteur),
- la mesure de rétention de matière fissile en boîte à gants,
- la définition de méthodes nouvelles de traitement et de quantification des radionucléides dans toutes sortes de colis.

L'organisation et la gestion de ces travaux de recherche ont été structurées par la norme ISO/NF 17025, « exigences générales concernant la compétence des laboratoires d'étalonnage et d'essais ». L'objectif premier de cette norme est la garantie de la fiabilité du résultat délivré et de son expression. Elle permet de reconnaître qu'un laboratoire est compétent et fiable pour effectuer des analyses ou essais définis dans un programme et que l'on peut avoir confiance dans les résultats fournis.

Mon évolution sur le site de Valduc m'a permis d'intégrer différents groupes d'expertise technique, internes au CEA ou externes au CEA. Cette facette de mon métier est détaillée dans le paragraphe 3.4.

Quatre ans après mon arrivée sur le site de Valduc, j'ai pris la responsabilité du laboratoire de mesure nucléaire, poste que j'occupe encore actuellement.

1.3 Positionnement des travaux

1.3.1 Cadre général

Mes travaux et donc le sujet de ce mémoire portent sur ce que je dénommerai dans la suite du document la « mesure nucléaire non destructive », c'est à dire l'ensemble des actions de mesures, d'établissement et d'utilisation des méthodologies non destructives de mesure et des appareils de mesures associés sur un « objet ³ contaminé », par un ou des radionucléides. L'objectif de la mesure nucléaire est de donner une valeur quantitative et/ou qualitative avec les incertitudes associées, détaillées et chiffrées, sur les radionucléides composant la contamination de l'objet sans modifier ni altérer l'intégrité de l'objet. L'objet contaminé peut être de différentes formes géométriques, de taille et de composition physico-chimique. A titre d'exemple, l'objet peut être un flacon de 500 ml, un panneau de boîte à gants,

3. De manière générale, le mot objet désigne une entité définie dans un espace à trois dimensions, qui a une fonction précise

une boîte à gants avec ou sans procédé à l'intérieur, une pompe, un fût, de type pétrolier, de déchets de 200 litres, ..., bref, tout composant ou consommable utilisé dans l'industrie nucléaire.

La mesure nucléaire non destructive est à différencier des mesures nucléaires utilisées comme moyens ultimes après échantillonnage, préparation, transformation de l'« objet contaminé » pour le « conditionner » au domaine de validité du moyen de mesure utilisé. C'est par exemple le mode de fonctionnement routinier en chimie analytique où, de façon générale, il y a prise d'échantillon, mise en solution, séparation, concentration, éventuellement dépôt puis mesure nucléaire du produit final.

La mesure nucléaire non destructive doit apporter des réponses aux grands enjeux de l'industrie nucléaire que sont la sûreté des installations nucléaires et la santé, l'impact environnemental, la performance, la fiabilité et la maîtrise de coûts. La mesure nucléaire, qui est un contrôle non destructif passif ou actif, est déployée principalement pour la quantification des radionucléides présents dans les effluents, les déchets liquides et solides, l'évaluation des masses de matières en rétention. Elle est aussi déployée de manière qualitative et/ou quantitative pour le suivi de procédé. Dans ce cas, elle revêt un caractère de contrôle de qualité de production mais la plupart du temps elle constitue un caractère de surveillance du respect du référentiel autorisé de fonctionnement de l'unité de production nucléaire. Ce référentiel de fonctionnement est validé par l'autorité de sûreté nucléaire compétente et tout écart par rapport à ce référentiel doit être déclaré dans les plus brefs délais à l'autorité. Un écart significatif peut amener la mise à l'arrêt de l'atelier jusqu'à nouvel avis favorable de l'autorité de sûreté. L'autorisation de reprise d'activité n'est déclarée que lorsque l'autorité de sûreté a validé les preuves détaillées et factuelles, apportées par l'exploitant, de retour au référentiel autorisé et les actions correctives garantissant que l'écart ne se reproduira pas. Ce sont les enjeux liés à la sûreté. Pour l'impact environnemental, la mesure nucléaire est utilisée pour la surveillance des rejets liés à l'exploitation des installations nucléaires. Pour cet enjeu, la mesure nucléaire est généralement le moyen ultime, c'est à dire qui intervient en bout de méthodologie après l'échantillonnage, la ou les concentrations, séparations chimiques nécessaires pour obtenir la grandeur recherchée, et son traceur éventuel associé, correspondant au domaine de validité de l'appareil de mesure nucléaire. Un tel processus ne fait plus partie de la mesure nucléaire non destructive. Par contre, la mesure nucléaire non destructive prend tout son intérêt vis-à-vis de l'impact environnemental lorsqu'il est question de caractériser les déchets nucléaires, qu'ils soient dans un surconteneur (fût, par exemple) ou colisés unitairement. En effet, ces déchets sont destinés à être stockés dans des sites spécifiques. L'enjeu lié à la santé est directement associé à la sûreté (risque criticité, irradiation), à l'environnement (maîtrise de la toxicité radiologique des déchets par

inventaire des radionucléides et de leur activité associée). Les autres enjeux sont liés à la productivité de l'industrie nucléaire, pas tant en terme d'augmentation des cadences ou des flux, mais plus en termes de contrôles de procédés en milieux extrêmes. Ces contrôles doivent être le plus possible déportés pour permettre une protection optimale des travailleurs vis-à-vis du risque d'irradiation (respect du principe ALARA). Cet aspect amène directement à l'enjeu de la fiabilité de la mesure qui est dans ce cas les « yeux » permettant de suivre le processus de fabrication. La fiabilité de la mesure est primordiale et est bien décrite par tous les enjeux cités dans ce paragraphe. De plus, sans fiabilité, il n'y a pas de maîtrise des coûts : une mesure fausse ou mauvaise amène une reprise du produit, un rebut, d'où une augmentation des coûts de production.

Tout ceci mobilise les personnes et nécessite :

- de réaliser des études pour spécifier les caractéristiques des produits de façon à définir les moyens nécessaires pour les contrôler,
- d'interroger les hommes de la fabrication pour analyser les moyens de mesures nécessaires à assurer la maîtrise des fabrications,
- de former les personnels chargés de réaliser les mesures, de gérer le parc des instruments de mesure,
- définir les méthodes de mesure et d'étalonnage,
- d'étudier la façon d'assurer la traçabilité des mesures. La traçabilité permet d'assurer une harmonisation des mesures au niveau national et international ce qui permet de comparer des résultats de mesures dans le temps et de l'espace,
- de mettre en place des techniques de surveillance des procédés de mesure qui permettront de s'assurer qu'il n'y a aucune dérive par rapport au domaine de validité de l'appareil de mesure.

Les enjeux décrits ici, déclinés sur l'ensemble des matériaux nucléaires, des composants et des consommables contaminés par leur contact avec les matériaux nucléaires, impliquent d'être capable de caractériser (identifier les radionucléides et quantifier leurs activités radiologiques) cet ensemble, très hétéroclite (conférer figure 1.3.1) avec de nombreuses modalités de milieu, de répartition et de forme du terme source, quantité de matière, de matériaux en jeu notamment dans les matrices, etc. Cet ensemble est constitué d'objets uniques, non normalisables. Le cas le plus typique est celui des déchets : qu'est ce qui est moins reproductible que le contenu d'une poubelle, même avec le tri sélectif ? Ceci reste valable même pour les objets positionnés dans un surconteneur (cas de paquets de déchets technologiques mis dans un fût de 200 litres) car même, si tous les surconteneurs sont identiques (fûts de 200 litres), le nombre d'agencements possibles des paquets dans le fût (position des paquets les uns par rapport aux autres), le mélange de nature physico-chimiques possibles (mélange de paquets de type métallique, organique,...), le positionnement des paquets (debouts, couchés,...) sont autant de

variables à prendre en compte pour la mesure. Cet état est représenté sur la figure 1.3.2. La situation de l'opérateur de mesure face à l'objet à caractériser est la suivante : la plupart du temps, sans historique sur l'objet, il doit fournir un résultat sans connaissance a priori des composants, des répartitions et de la valeur recherchée. A partir de ces fortes variabilités potentielles et non maîtrisable (notamment la localisation et l'étendue de la contamination sur l'objet) et même si la méthode de mesure est parfaitement définie, validée ainsi que l'appareil de mesure, la solution la plus souvent appliquée consiste à établir des familles d'objets contaminés les plus homogènes possibles. La méconnaissance de la variabilité de ces facteurs à l'intérieur d'une famille est retranscrite au travers de l'incertitude finale associée au résultat de mesure. L'incertitude associée est alors estimée à partir des variations extrêmes des facteurs de variabilité, ce qui a pour conséquence directe une incertitude associée élevée (coefficient de variation supérieur à plusieurs dizaines de pour cent). Une autre voie est le recours à l'expertise systématique avec analyse des composantes de l'incertitude. Cette voie est très coûteuse en temps, en ressource humaine et financièrement ; elle n'est donc déployée que ponctuellement sur des cas critiques. La solution optimum est une méthodologie « auto-ajustable » à l'objet avec incertitude associée liée à l'objet et non plus à une « famille » d'objets.



FIGURE 1.3.1: Photographies de divers objets contaminés à caractériser

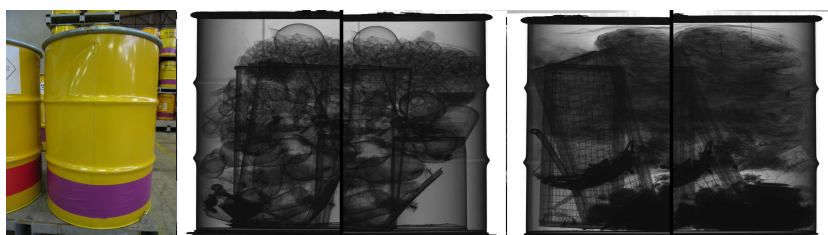


FIGURE 1.3.2: Radiographies X de fûts de déchets technologiques nucléaires

Ces éléments font que le principe initial de mesure, qui est de comparer deux grandeurs entre elles -la valeur recherchée est alors comparée à une valeur de référence (étalon)- est difficilement applicable, d'autant plus, notamment pour ce qui concerne les actinides (uranium, plutonium) puisqu'il est extrêmement difficile de disposer d'étalons raccordés compatibles avec les conditions opératoires de la mesure nucléaire non destructive. En effet, de par la diversité des objets, il est quasiment impossible d'obtenir un objet de référence, raccordé ou non, représentatif de chaque objet à caractériser. La continuité entre chaque variable est alors assurée par la « famille » d'objets, représentative d'un ensemble d'objets dans une plage de variabilité des facteurs définie et bornée.

Cette richesse des problématiques de mesures nucléaires non destructive nécessite presque systématiquement, avant mise en œuvre, une étude pour spécifier les caractéristiques des objets à caractériser et des grandeurs recherchées de façon à définir les méthodes et les appareils de mesures propres à réaliser cette tâche. La complexité du comportement du système -données d'entrée, processus de traitement de ces données, données de sorties (résultat de mesure)- demande une expertise particulière pour le dimensionnement des postes de mesure, surtout en ce qui concerne la mesure neutronique, pour la définition du traitement des données d'entrée et pour l'évaluation des performances du système qui permettront de vérifier que le moyen de mesure répond correctement au cahier des charges. Ceci est particulièrement vrai lorsqu'il s'agit de répondre à un nouveau besoin en termes de mesures. Le recours à des codes de transport de particules à 3 dimensions [23, 6, 10], reconnus et validés, est indispensable pour réaliser correctement cette étape cruciale de définition et d'optimisation du moyen de mesure. L'optimisation porte aussi bien sur l'atteinte des performances requises en un minimum de temps que sur l'ergonomie, la facilité d'utilisation et de maintenance du moyen de mesure, le tout pour un coût au mieux minimisé. Là encore, grâce à l'aide des codes de calculs, le dimensionnement est maîtrisé mais ce qui conditionne l'exactitude du résultat final, c'est bien la diversité des objets que doit caractériser le moyen de mesure et les variabilités associées. Plus cette variabilité sera faible, plus le système sera performant et juste. Par analogie, il est bien plus facile de tenir des performances strictes sur une gamme de pesée réduite que sur une gamme élargie. En effet, il est illusoire de concevoir un moyen de pesée quantifiant aussi bien des masses de l'ordre du milligramme avec une incertitude du dixième de milligramme jusqu'à des masses de plusieurs centaines de kilogrammes, avec la même incertitude. Il est de même inconcevable d'évaluer une masse de plusieurs centaines de kilogrammes sur une balance dont la gamme maximum est de l'ordre du gramme. C'est pour cette raison que l'étude doit spécifier les caractéristiques des objets à caractériser et les grandeurs recherchées et doit établir de façon formelle le domaine de validité de l'appareil de mesure. Le code de calcul est un outil précieux mais pour qu'il

puisse amener à définir le moyen de mesure correctement, l'utilisateur doit bien maîtriser le fonctionnement du capteur mis en œuvre, la physique nucléaire mise en jeu, notamment les interactions rayonnements matière impliquées et la métrologie qui sera déployée pour quantifier la grandeur recherchée.

Une fois le moyen de mesure optimisé et réalisé, il reste à définir une étape non moins complexe et importante qui est la métrologie associée au moyen de mesure. Il faut savoir quel étalonnage réaliser et comment le réaliser (nombre et type de source, quels objets de référence représentatifs de quelle famille, définition et estimation des incertitudes types et finales à associer à la mesure, type de régression à utiliser,...), comment valider la méthodologie de mesure, sur quels éléments est déclarée la qualification de l'appareil (étalonnage + vérification étalonnage + contrôle des performances attendues), quels contrôles périodiques mettre en œuvre afin de garantir toute dérive éventuelle avec sortie du domaine de validité de l'appareil (périodicité, quel composant (électronique, capteur,...) ou composante (température, bruit de fond,...) critique est à surveiller,...).

Il ressort de cette description globale de la mesure nucléaire non destructive qu'elle fait appel aux métiers suivants :

- instrumentation, capteur, ce qui constitue la partie amont de la mesure nucléaire non destructive et constitue à part entière un métier avec ses propres hommes de l'art. Toutefois, avoir un capteur adapté au besoin, est une condition nécessaire mais pas suffisante à la mise en œuvre de la mesure nucléaire non destructive car le capteur ne définit ni ne valide la méthodologie de mesure (traitement appliqué) et n'apporte pas les garanties requises sur le résultat de mesure,
- physique nucléaire par le biais des interactions rayonnement-matière, qui constitue la base de la connaissance permettant d'appréhender les facteurs ayant un impact significatif sur le résultat de mesure et surtout de connaître le lien de causalité entre le signal recueilli par le détecteur et l'émission radiative émise par l'objet à caractériser,
- statistique, ce qui constitue la base de la définition des opérations élémentaires (traitement du signal, tests sur la mesure, étalonnage,...),
- métrologie, ce qui constitue la mise en œuvre de la mesure nucléaire non destructive (mode opératoire de routine de l'appareil de mesure, alimentation de l'amélioration continue).

L'homme de l'art doit donc posséder de solides connaissances dans ces domaines respectifs pour répondre à l'expression du besoin et garantir la crédibilité des résultats rendus par ce type de contrôle non destructif.

Tous ces éléments fournissent un vaste champ d'étude et ils constituent le cadre des travaux de recherche que je mène, et comme le montre mon parcours professionnel, ce sont des travaux de recherche appliqués au monde industriel de l'énergie

atomique.

1.3.2 Métrologie des moyens de mesure nucléaire non destructive

Philosophie de la mesure

Dans le cadre de la mesure nucléaire non destructive, les appareils de mesure sont composés, en première approche, d'un capteur, chargé de convertir l'émission radiative d'intérêt en impulsion électrique, d'une électronique de « mise en forme », chargée de mettre en forme l'impulsion électrique et de la classer dans le bon canal afin de pouvoir comptabiliser le nombre d'unités placées dans ce canal - à ce stade un seul canal peut être présent (comptage) ou plusieurs (spectrométrie) -, d'un logiciel de visualisation du ou des canaux. Une fois l'appareil de mesure défini et établi, il faut créer le lien entre le donné quantifiable recherché et la sortie (réponse) de l'appareil de mesure. Quoiqu'il en soit, pour cela il faut appliquer à un donné quantifiable - c'est-à-dire à une grandeur - un étalon de référence, jouant le rôle d'unité. Cet étalon de référence sera de même nature radiative (gamma, bêta, alpha,...) que le donné quantifiable recherché. L'opération de mesure consiste alors à comparer le nombre d'unités, dues au donné quantifiable, présentes dans le ou les canaux par rapport au nombre d'unités, dues à l'étalon de référence, extrapolées ou non dans le ou les canaux (il n'est pas rare que l'étalon de référence ne couvre pas tous les canaux ou les canaux identiques au donné quantifiable recherché). L'objectif est de pouvoir exprimer par une expression numérique le rapport de ces deux grandeurs, l'étalon servant à évaluer l'autre grandeur. L'expression numérique établit, par convention abstraite, une relation de proportionnalité qui fait fi de toute hétérogénéité qualitative. En effet, dans toute mesure nucléaire non destructive, il est systématiquement utilisé une expression numérique pour quantifier la grandeur recherchée qui permet de réaliser le lien entre l'émission radiative et la valeur de la grandeur. C'est donc nous qui construisons la mesure des grandeurs, après avoir produit, par idéalisation, la grandeur elle-même. Pour preuve, les expressions numériques utilisées sont généralement la combinaison de plusieurs grandeurs (probabilité d'interaction du rayonnement (sections efficaces), probabilité d'émission radiative de la particule (rapport d'embranchement), probabilité de capter la particule dans son environnement (rendement de détection),...), elles mêmes obtenues par des procédés identiques, voire par les mêmes appareils et méthodes de mesure (l'activité radiologique de l'étalon, même raccordé au système international, est réalisé de façon équivalente à la mesure elle-même). On est dans la situation où la mesure de grandeurs est définie par plusieurs variables indépendantes mais liées conditionnellement entre elles aux autres variables (la probabilité d'interaction ne se produira que s'il y a émission de la particule (rapport d'embranchement), etc).

Dans cet exemple, le découpage abstrait du continuum physique (émission, parcours et détection de la particule) entrecroise plusieurs ordres de données (sections efficaces, rapport d'embranchement,...). La différence et l'indépendance mutuelle de ces ordres ne nous empêche cependant pas de les superposer à un autre ordre, l'unité de mesure (généralement le becquerel) du donné quantifiable. Cette superposition de différentes variables reliées entre elles par l'idéalisation mathématique de la réalité que nous faisons au travers de l'expression numérique permettant d'aboutir au donné quantifiable recherché ne fonctionne que par le fait qu'il est possible de démontrer sa logique et son bien fondé que par la comparaison à une valeur de référence « étalon ». Cette disposition permet la « retranscription » du continuum physique. La valeur et le bien fondé de l'« étalon » sont garantis par le fait que lui-même est raccroché (raccordé) à une autre valeur « primaire » (raccordement à un étalon primaire). En effet, dans la logique où chaque variable est raccrochée indépendamment à une unité primaire, souvent par une chaîne ininterrompue longue et complexe, l'étalon raccroché permet de valider la superposition⁴ finale réalisée au travers de l'expression numérique ainsi que l'univocité de l'unité du donné quantifiable recherché (dans notre cas, le becquerel) donné par cette expression.

Cependant, se pose la question de l'estimation et de la justification de l'étalon primaire si tout n'est qu'« idéalisation » mathématique. La raison, notre raison, nous impose, dans ce cas, comme point de départ axiomatique, une estimation de ce continuum physique basé sur un consensus de la valeur de cet étalon (unité) estimé par plusieurs opérateurs, méthodes, appareils de mesure et dont l'unité (au sens d'homogénéité) des résultats est garantie par des critères fixés, là encore, par nous, même s'ils sont transcrit sous forme de tests statistiques. Bien sûr, afin de garantir la meilleure estimation de l'unité de cet étalon, qui est le point de départ de toute mesure et des validations de la physique (car il n'y a pas de physique sans mesure), l'estimation de l'unité recherchée se fait par comparaison directe, sans aucune expression numérique intermédiaire (le mètre est la longueur du trajet parcouru dans le vide par la lumière pendant une durée de $1/299\,792\,458$ seconde). De cette estimation, il en va de la reproductibilité des mesures dans le temps et dans l'espace. C'est ainsi qu'il est défini sept unités de base du Système International d'unités (SI), qu'il existe des correspondances entre elles (historiquement le kilogramme est la masse d'un décimètre cube d'eau (1 litre) à 4 °C, donc lié au mètre), que toutes les autres unités du SI peuvent être dérivées de ces unités de base (le becquerel correspond à une désintégration par seconde. Il est donc homogène à la seconde à la puissance moins 1). De même, une fois la grandeur de référence établie, le

4. On entend par superposition le fait que l'expression numérique combine plusieurs unités, la plupart du temps elles-mêmes dérivées des unités primaires. De ce fait, il y a « superposition » des unités primaires (on retrouvera, par exemple, plusieurs fois l'unité « mètre » dans les variables de l'expression numérique dans cette combinaison).

raccordement à cette grandeur (par succession de comparaisons) permet d'évaluer méthodes, appareils, mode opératoire autour de cette grandeur raccordée de référence ou d'un de ces multiples : c'est le principe de l'intercomparaison. Toute la puissance de l'intercomparaison tient dans la continuité de la chaîne ininterrompue entre le donné quantifiable « intercomparé » et l'unité primaire. C'est pour cela aussi, lorsque l'unité des méthodes et des appareils⁵ jouant dans l'intercomparaison est satisfaite, il est possible d'évaluer l'incertitude liée aux résultats de mesure délivrés pour la quantification de cette grandeur (« dispersion » autour du donné quantifiable recherché avec établissement de la distribution des résultats de mesure, donc quantification de l'incertitude). Ceci correspond à un point dans le domaine d'usage potentiellement demandé à la technique de mesure. On voit immédiatement qu'il est nécessaire de répéter plusieurs fois l'opération pour couvrir toute la gamme demandée. C'est le principe de l'étalonnage.

L'incertitude reflète, pour le cas de l'étalon primaire, le « consensus » (par définition flou) autour de sa valeur, et quoi qu'il arrive, malgré les progrès de la science et en vertu du principe d'Heisenberg, comme la valeur vraie demeure inaccessible, elle reflète aussi les valeurs les plus probables de cette grandeur vraie. Elle est aussi le reflet de l'extrapolation réalisée lorsqu'on sort d'un multiple direct de l'étalon qui a servi à établir l'étalonnage. De même, chaque étalon « fils », qu'il soit unitaire ou multiple de l'étalon primaire, a une incertitude liée à cette « duplication ».

L'opération de mesure n'a donc de consistance physique, dans le sens consistance concrète, que par l'acte de comparaison que nous opérons, par le rapprochement conscient, à un instant présent donné (photographie d'une scène), des grandeurs considérées (étalon de référence et donné quantifiable recherché) au travers d'une même expression numérique « idéalisée », bâtie sur la raison. La mesure des phénomènes n'est donc pas une propriété du réel physique lui-même, pas plus que, déjà, sa grandeur. Elle est une construction de la raison. Cette raison est le fruit de l'esprit humain et il faut donc déabsolutiser nos résultats théoriques : le vêtement idéal et mathématique que la science applique sur le réel physique n'est pas à prendre pour la manifestation de sa nature même.

Ce n'est donc pas seulement l'« incertitude » de la mesure, c'est-à-dire l'impossibilité de la détermination exacte du donné quantifiable recherché, qui est co-déterminée par l'intervention de l'expérimentateur et par l'appareil de mesure : c'est la mesure elle-même. Toutefois, la subjectivité de toute mesure – comme de toute méthode depuis Descartes – ne signifie ni son caractère arbitraire ou irrationnel, ni son caractère inexact ou fantaisiste. Elle ne veut pas dire non plus que nos mesures manquent d'« objectivité » : elle signifie, plus radicalement, qu'il n'y a, en science, aucune objectivité possible en dehors de son fondement dans et par la raison : c'est donc à la fois sa formulation la plus rationnelle, et le produit de

5. Appareils de mesure identiques, méthodes de mesure identiques

notre subjectivité. La structure mathématique qu'exposent les lois physiques ne doit donc surtout pas être prise pour la structure même des choses ; ce n'est pas une loi de la nature, mais seulement notre manière de nous en rendre « comme maîtres et possesseurs ». Il s'agit bien ici, pour répondre aux enjeux sociétaux liés à la mesure de construire des modèles substitutifs du réel, pas de le révéler. La motivation première à notre effort de mesure et de contrôle de la qualité est d'ordre éthique et non théorique.

L'acte rationnel du processus de dissection de la mesure, amenant à la quantification de la grandeur recherchée en lui attribuant une loi physique qui n'est pas celle de la nature, est la méthode. Cet acte technique s'apparente à ce que Descartes dénomme la « méthode ». Galilée a inventé la notion moderne de loi physique : la possibilité d'exprimer un rapport de dépendance causale entre deux états d'un système physique sous la forme d'un rapport mathématique entre des mesures, dont on montre qu'il se vérifie expérimentalement, devenait ainsi le principe fondamental de l'interprétation moderne de la nature et des lois du mouvement. Par contre, cette interprétation ne suffit bien sûr pas pour décrire les phénomènes stochastiques, tels que les émissions radiatives. Toutefois, l'opération de mesure implique la mise en jeu de variables fluctuant autour d'une valeur centrale (collecte de charges, bruit électronique, conditions environnementales ou tout simplement la *probabilité* d'émission radiative...). Cette situation oblige à substituer à la notion de grandeurs mesurables celle d'une distribution de valeurs possibles que l'on détermine indirectement par un calcul de leur probabilité. Cela peut être traduit par : soit Ω l'ensemble des résultats de mesure possibles du donné quantifiable recherché véhiculé par l'opération de mesure. On suppose cet ensemble fini, c'est-à-dire $\Omega = \omega_1, \dots, \omega_m$. Il existe un seul et unique résultat de mesure qui soit correct, ω_j ; il est cependant impossible de l'identifier avec certitude. On suppose par contre que la probabilité $p(\omega_j)$ pour que ω_j soit correcte est connue pour chaque résultat de mesure ω_j avec $j = 1, \dots, m$. Il n'est pas nécessaire de considérer les résultats de mesure de probabilité nulle. De ce fait, elles seront éliminées. Soit $p(\omega_j) > 0$ avec $j = 1, \dots, m$ la probabilité que le résultat de mesure ω_j soit le résultat correct. On suppose que $\sum p(\omega_j) = 1$, étant donné que parmi tous les résultats possibles, un doit être correct. Il a été ainsi introduit un espace de probabilité (Ω, P) qui représente l'incertitude rattachée à l'opération de mesure. Les résultats de mesure ne sont pas nécessairement tous équiprobables. Il faut faire à ce stade une remarque importante : c'est donc aussi l'idéal d'une quantification continue du réel physique et chimique qui doit être abandonné (appel à la notion de « population » statistique, probabilité et non plus de notion algébrique). Dès lors, la mesure, procédure fondamentale de la science galiléenne, ne porte plus sur l'objet physique lui-même mais sur un résultat statistique. La nécessité d'une méthode résulte de la structure logique interne de la raison et n'en reste pas moins d'actualité. Car c'est en vertu

de cette structure – régie par le principe logique suprême qu’est le principe de non-contradiction – qu’un énoncé scientifique, même vrai, et vérifié dans l’expérience, n’a de consistance physique que lorsqu’il est démontré. Démontrer veut dire : insérer dans un enchaînement de justifications, qui montrent la nécessité logique de poser la proposition concernée, dès lors que certaines propositions antérieures sont tenues pour vraies. Ne pas démontrer c’est s’exposer à énoncer un résultat dont on est incapable d’évaluer la consistance physique.

L’acte technique principal de cette évaluation de la consistance physique est la validation de méthode, pour confirmer, « par examen et apport de preuves objectives », le fait « que les exigences particulières en vue d’une utilisation prévue et déterminée sont remplies ». Parmi les aspects importants de cette validation, on peut noter la caractérisation de la méthode, c’est-à-dire par exemple l’estimation des incertitudes, des limites de détection, de la robustesse, etc. Elle apparaît comme un procédé technique, celui de la production d’énoncés scientifiques valides. C’est un ensemble ordonné de manière logique de principes, de règles, d’étapes, qui constitue un moyen pour parvenir à un résultat. Si une méthode qui est déjà par elle-même un procédé rationnel de contrôle de la valeur de certains énoncés (de la science comme théorie) ou de certains résultats (ceux de la pratique technique), a elle-même besoin d’être contrôlée (ou « validée »), cela tient à l’essence même de toute méthode. Il est nécessaire de garantir que le procédé rationnel est de l’ordre du syllogisme et non du sophisme et que la subjectivité de la mesure – ce calque rationnel appliqué sur la réalité, le continuum physique – garantit que la comparaison de grandeurs que nous opérons est fondée et que les exigences particulières en vue d’une utilisation prévue et déterminée sont remplies. Autrement dit, la méthode appliquée pour répondre à ces exigences particulières sera, pendant toute la durée de l’usage de cette méthode, un carcan borné (notion de domaine de validité) qui assurera que la comparaison des grandeurs étalon et du donné quantifiable recherché, expression numérique incluse, est fondée et justifiée.

L’estimation de l’incertitude, qui doit refléter la confiance que l’on a dans le donné quantifiable estimé, est elle même le fruit de notre raison et n’a pas plus de consistance physique que la mesure elle-même. Qui, devant rendre un résultat de mesure, ne s’est posé la question : la valeur du donné rendu correspond-elle à la valeur réelle du quantifiable recherché ? Est-ce que l’incertitude associée, qui doit englober cette incertitude vis-à-vis de la valeur réelle du quantifiable recherché, englobe t’elle effectivement cette valeur réelle ? Comment et qui pourrait s’en assurer alors même que toute autre « contre-mesure » serait entachée des mêmes doutes et de la même subjectivité ? C’est la problématique de la détermination de l’espace de probabilité (Ω, P) qui représente l’incertitude rattachée à l’opération de mesure. Il n’est pas possible là aussi, comme pour la grandeur, d’obtenir une estimation de la variance « vraie ». C’est ainsi qu’on obtient une estimation de

la variance « vraie », c'est à dire, qu'une fois exprimée et chiffrée l'erreur résultant de l'opération de mesure sur le donné quantifiable recherché on évalue, parmi toutes les valeurs probables que l'on peut attribuer au donné quantifiable suite à l'opération de mesure, l'intervalle dans lequel le donné quantifiable recherché possède une forte probabilité de se trouver et qui reflète notre degré de confiance dans l'opération de mesure effectuée (généralement 95%). Ensuite, la principale difficulté réside dans la propagation et la combinaison de ces incertitudes au travers de l'expression numérique utilisée pour rendre le résultat. La base de l'estimation de l'incertitude est l'utilisation de la connaissance existante.

Une remarque importante est que dans tout ce paragraphe il est admis que le résultat de mesure est obtenu indépendamment de toute variabilité discrète qualitative des facteurs impactant l'opération de mesure (variation de nature physico-chimique, forme géométrique, densité par rapport à la comparaison avec l'étalon de référence) par rapport aux conditions de référence de la mesure (étalonnage). Or dans le contexte de la mesure nucléaire non destructive, cette variabilité est récurrente dans les cas les plus complexes où la nature (matrice) de l'objet à caractériser est inconnue (Cf paragraphe 1.3.1, figure 1.3.2). Aussi, la démonstration de la méthode ne tient que par la comparaison à un étalon raccordé ainsi qu'à la rigueur de la relation, établie par l'opérateur de mesure (notion de savoir faire), entre la configuration de mesure en présence et le donné quantifiable recherché (prise en compte correcte de la variabilité discrète). Autrement dit, les objectifs à atteindre doivent être clairement définis, les étapes de la définition d'une méthode de mesure robuste doivent être respectées jusqu'à la validation complète de la méthode de mesure, avant son utilisation en routine.

C'est ainsi que dans de telles situations la statistique fournit les outils mathématiques pour quantifier les grandeurs recherchées, mais il faut s'assurer de leur consistance physique, tant des outils que de la méthode utilisée, pour l'application recherchée.

Objectifs à atteindre

La multitude d'applications de la mesure et des outils statistiques utilisés pour démontrer sa capacité à répondre au besoin est reflétée notamment par la richesse des normes traitant du sujet (normes validation de méthodes, d'estimation de l'exactitude, de comparaison de moyennes, de métrologie, d'aptitude des laboratoire d'essais, de quantification de limite de détection, de comptage neutronique, de spectrométrie gamma, de spectrométrie alpha,...). Cette richesse reflète le besoin de quantification, de mesure pour avoir des critères factuels basés sur des énoncés scientifiques, qui ont une consistance physique et qui sont autant d'indicateurs de pilotage d'une activité, de contrôle ou de surveillance.

Le fait de développer un capteur, d'obtenir une relation entre le signal donné

par le détecteur et le donné quantifiable recherché n'est que la phase préliminaire de la démarche de caractérisation d'une grandeur physique par « méthode ». Une fois la première étape franchie, de la viabilité du détecteur, il faut établir toutes les relations permettant l'exploitation continue, sûre et robuste dans un domaine de validité défini pour une application spécifique permettant de garantir la mesure de la grandeur recherchée.

Les systèmes de mesures nucléaires non destructives sont des systèmes complexes qui s'appuient sur des méthodes complexes de détermination du donné quantifiable recherché. Mes travaux de recherche et de développement portent sur la définition et le développement de tels système de mesure. Parmi les enjeux liés à ces travaux figurent l'étude des incertitudes relatives au système complexe lui-même et l'étude des incertitudes relatives au processus global de son développement.

La définition et le développement de système de mesure nucléaire non destructive nécessite d'atteindre les objectifs suivants qui sont :

- d'améliorer l'existant ou créer à partir de l'expression de besoin,
- d'explorer de la façon la plus exhaustive possible les différentes combinaisons des entrées. Cette étape doit permettre de classer les entrées en trois groupes selon leurs effets sur la sortie : effet négligeable, effet linéaire et sans interaction, effets non linéaires et/ou avec interactions. On entend par entrée les données nécessaires à l'exécution de la mesure et par sortie la ou les réponse(s) donnée(s) par l'opération de mesure.
- identifier les entrées impactantes (afin de prioriser la R&D),
- établir l'expression numérique reliant les entrées et la sortie qui permettra la quantification de la grandeur d'intérêt par l'intermédiaire de la sortie,
- réduire l'incertitude de la prédiction par l'intégration dans la méthode des effets des données impactantes sur la sortie,
- calibrer les paramètres du modèle.

Lorsque l'étude de conception d'un nouveau moyen de mesure est lancée, répondre à ces objectifs permet d'optimiser les performances du système, notamment lors de la phase du dimensionnement du moyen de mesure.

L'étude et la prise en compte des incertitudes associées aux résultats de mesure fournis par le système fait partie et est transverse à ces objectifs. La méthodologie de gestion des incertitudes suit quatre étapes :

- Étape 1 : identification des incertitudes,
- Étape 2 : analyse de leurs effets,
- Étape 3 : réduction et/ou exploitation des incertitudes,
- Étape 4 : validation des solutions et contrôle des incertitudes,
- Activité en parallèle : représentation des incertitudes. Cette activité démarre à la fin de l'étape d'identification. Elle consiste à lister les incertitudes en vue de les analyser et de les traiter.

Les objectifs de cette méthodologie sont les suivants :

- Comprendre (ou prévoir) l'influence ou l'importance des incertitudes au cours du développement et donc guider les efforts de développement,
- démontrer la conformité du système avec des critères explicites ou des seuils réglementaires (par exemple des normes),
- gérer les données concernant les incertitudes de façon cohérente,
- comparer les performances des différentes solutions pour le meilleur choix.

L'hypothèse de l'application de cette méthodologie réside dans le fait que l'organisation possède des données suffisantes pour que l'identification des incertitudes soit raisonnablement possible. La plupart du temps, il s'agira des données issues du retour d'expérience sur des systèmes similaires ou existants. Une fois l'appareil de mesure et la méthodologie d'exploitation définis, il faut apporter toutes les garanties concernant le respect des exigences fournies lors de l'expression du besoin : c'est la validation. La validation d'une méthode analytique, comme le définit la norme, est la procédure par laquelle on démontre, preuves expérimentales à l'appui, que les performances de la méthode permettent de répondre aux exigences de l'usage auquel elle est destinée. La portée de la validation englobe l'ensemble du processus analytique, depuis le prélèvement et le traitement de l'échantillon jusqu'au traitement des données et à l'expression du résultat, en passant par les éventuelles étapes de séparation, de détection, de traitement du signal. . . car toutes ces étapes conditionnent la fiabilité du résultat. La validation d'une méthode analytique ne s'effectue qu'après que la méthode ait été définie (étude du problème analytique, choix des données quantifiables, choix de la méthode, choix du signal, . . .) et complètement développée (optimisation des conditions expérimentales, par un plan d'expérience ou empiriquement, évaluation de sa robustesse, définition des calculs requis puis description de la procédure, . . .). Pour la validation, un système qualité doit être en place (équipement qualifié, opérateurs qualifiés, . . .), le protocole de validation doit être rédigé et les critères d'acceptation de la validation devront être définis. Une fois la méthode validée, elle pourra être utilisée en routine, moyennant la réalisation de tests de conformité. Elle pourra aussi être transférée à un autre laboratoire. Pour valider une méthode, il est donc nécessaire de traduire les besoins en termes de performances, afin de les comparer ensuite avec les caractéristiques estimées de la méthode candidate.

Outils pour atteindre les objectifs

L'atteinte des objectifs mentionnés dans le paragraphe précédent passe par la maîtrise de l'ensemble du processus lié à l'opération de mesure, comprenant l'appareil de mesure, le traitement de la mesure et le processus de mesure. Plusieurs termes vont être définis dans ce paragraphe. Ils seront repris tout au long de ce document.

Le résultat de mesure est un ensemble de valeurs attribuées à la grandeur que l'on veut mesurer (mesurande), complété par tout autre information pertinente disponible. Le résultat de mesure est généralement exprimé par une valeur mesurée unique et une incertitude de mesure. L'incertitude de mesure est un paramètre positif qui caractérise la dispersion des valeurs attribuées à un mesurande, à partir des informations utilisées. L'incertitude-type est l'incertitude de mesure exprimée sous la forme d'un écart-type.

Les garanties sur le résultat de mesure sont apportées par l'étape de validation.

La validation se définit comme « la confirmation par examen et l'apport de preuves objectives du fait que les prescriptions particulières en vue d'une utilisation prévue déterminée sont remplies », norme ISO/CEI 17025, § 5.4.5.1. Il faut donc démontrer que la méthode mise en œuvre est apte à l'emploi prévu (besoin du client). Il faut apporter les preuves de la maîtrise des données et de la méthode. L'approche généralement retenue est de caractériser les performances des méthodes d'analyse en les évaluant, au travers de travaux expérimentaux, de caractéristiques [17, 5]. Les caractéristiques le plus souvent évaluées sont : la sélectivité, la spécificité, la répétabilité, la reproductibilité, la linéarité, la sensibilité, la capacité de détection, la robustesse, la justesse. L'objectif final est bien d'évaluer l'incertitude de la méthode mise en œuvre. La démarche d'évaluation des incertitudes proposée par le GUM (Guide to the expression of uncertainty in measurement [4]) est fondée sur l'analyse détaillée d'un processus analytique, de manière à identifier systématiquement et à quantifier toutes les sources d'incertitudes. On définit l'incertitude de mesure comme un paramètre, associé au résultat d'un mesurage, qui caractérise la dispersion des valeurs qui pourraient être raisonnablement attribuées au mesurande. On définit l'incertitude type comme l'incertitude du résultat d'un mesurage exprimée sous la forme d'un écart-type. On part du principe que l'incertitude doit être unique (elle quantifie le doute sur la mesure), universelle (elle est applicable à toute mesure), cohérente (calculable à partir des composants induisant des incertitudes) et transférable (applicable pour une autre mesure). La méthode de type B est appliquée lorsqu'il n'est pas possible de répéter l'expérience. Dans ce cas, on évalue l'incertitude-type pour la donnée d'entrée concernée par un jugement scientifique fondé sur toutes les informations disponibles au sujet de la variabilité de la donnée d'entrée (résultats de mesures antérieures, expérience ou connaissance générale du comportement et des propriétés des matériaux et instruments utilisés, spécifications fabricant, données fournies par des certificats d'étalonnage, incertitudes assignées à des valeurs de référence provenant d'ouvrage ou de manuels, ...). Elle consiste à évaluer l'écart-type de la grandeur après avoir fait des hypothèses sur la variable aléatoire. L'incertitude de type B est généralement appliquée à la mesure nucléaire non destructive. L'ensemble de ces caractéristiques peut être établi par plan d'expérience.

Les plans d'expérience consistent à sélectionner et ordonner les essais afin d'identifier, à moindres coûts, les effets des paramètres sur la réponse du produit. Il s'agit de méthodes statistiques faisant appel à des notions mathématiques simples. La mise en œuvre de ces méthodes comporte trois étapes :

1. postuler un modèle de comportement du système (avec des coefficients pouvant être inconnus),
2. définir un plan d'expériences, c'est à dire une série d'essais permettant d'identifier les coefficients du modèle,
3. faire les essais, identifier les coefficients et conclure.

Le contexte d'utilisation des plans d'expérience recouvre des phénomènes de type « boîte noire » que l'on cherche à « éclaircir » pour mieux en comprendre le fonctionnement et en optimiser les performances. La démarche est expérimentale : l'information sur le phénomène observé est acquise à partir d'essais (ou de calculs simulant les essais). Cela impose une connaissance minimale sur le phénomène étudié avant d'entreprendre les essais. On doit être en mesure de lister les paramètres susceptibles d'agir sur le fonctionnement de la boîte noire. Ces paramètres sont les « entrées » de la boîte noire, appelés par la suite facteurs. Ce sont des variables devant, pour la plupart, être maîtrisées, car pour un essai ou pour le fonctionnement réel, il faut pouvoir fixer leur valeur à un niveau donné. Les performances observées sur le phénomène étudié sont elles-mêmes à identifier avant les essais. Ce sont les « sorties » de la boîte noire, appelés par la suite « réponses ». Avant de lancer les essais, on doit s'assurer de pouvoir les mesurer. Les réponses sont des variables aléatoires, de préférence continues. L'objectif est, à partir des résultats d'essais réalisés, de chercher à expliquer le fonctionnement de la boîte noire en estimant les réponses pour des combinaisons non réalisées des paramètres d'entrée. Le but est de trouver une configuration des paramètres d'entrée qui résolve le problème. Le point de départ est l'hypothèse qu'en identifiant bien les variables d'entrée, et en restreignant leur plage de variation, le phénomène physique peut être approché par une fonction sur ces variables, par exemple un polynôme. Cette fonction suffit à illustrer le phénomène physique pour optimiser son fonctionnement. Pour permettre une illustration fidèle et l'optimisation des performances du système étudié, le modèle doit être « représentatif » des essais réalisés et des essais à prévoir (estimation de configurations non réalisées). Cette démarche s'inscrit dans la démonstration de la consistance physique de la méthode telle que décrite dans le paragraphe 1.3.2.

Les facteurs sont les variables supposés agir sur la réponse. Pour les identifier, il faut avoir une idée, a priori, du fonctionnement du système. Les actions regroupent les facteurs (variables « élémentaires ») et les interactions (« combinaisons » de facteurs). Les facteurs peuvent être de deux natures différentes : qualitative et quantitative. Ils sont de préférence maîtrisables, afin de construire le plan qui

contient les valeurs des facteurs choisis à l'avance. Une interaction entre facteurs est souvent comparée à une synergie entre les facteurs qui se traduit par un effet non additif.

Le plan d'expérience est la matrice d'essais ; c'est la liste des combinaisons des niveaux des facteurs définie à l'avance, qu'il faudra réaliser pour obtenir les résultats d'essais à analyser. Il permet notamment d'évaluer conjointement les caractéristiques suivantes :

- la sélectivité qui peut se définir comme l'aptitude d'un élément de la méthode d'analyse (appareil de mesure, milieu,...) à discerner un mesurande donné dans un mélange complexe. La spécificité est la propriété d'une méthode d'analyse de convenir exclusivement à la caractéristique ou au mesurande, avec la garantie que le résultat de l'analyse ne provient que du mesurande. Très souvent la spécificité se fonde sur une absence d'interférence. Les effets liés à la sélectivité et à la spécificité sont évalués globalement lors de l'évaluation de la justesse,
- la fidélité qui est l'étroitesse de l'accord entre des résultats d'essais,
- la répétabilité qui est l'étroitesse de l'accord entre les résultats d'essais (fidélité) sous des conditions où les résultats d'essais sont indépendants et sont obtenus par la même méthode sur des individus d'essais identiques dans le même laboratoire, par le même opérateur, utilisant le même équipement et pendant un court intervalle de temps. Elle représente la valeur minimale de la fidélité de la méthode lorsqu'elle est utilisée par le laboratoire. Dans la grande majorité des méthodes d'analyse utilisées dans le monde industriel, les variances liées à ces caractéristiques figurent parmi les éléments les plus significatifs pour l'évaluation de l'incertitude. Ce n'est pas le cas dans les méthodes d'analyse présentées dans le cadre de ce mémoire HDR,
- la capacité de détection qui regroupe les caractéristiques seuil de décision et limite de détection. Ces caractéristiques servent essentiellement à définir le domaine d'utilisation de la méthode d'analyse. Elles n'ont pas d'incidence directe sur l'évaluation de l'incertitude. Elles ont néanmoins une importance sur la façon de rapporter les résultats, notamment lorsque les valeurs du mesurande sont inférieures à la limite de détection et sur les exigences spécifiées lors de la définition du besoin,
- la robustesse peut être définie comme l'aptitude d'une méthode d'analyse à fournir de faibles variations du résultat lorsqu'elle est soumise à des modifications contrôlées des conditions d'application. La technique de la planification d'expérience permet d'analyser l'influence des différents facteurs qui sont supposés avoir une action sur la variable de réponse (le résultat de l'analyse). Les facteurs peuvent être quantitatifs (on fixe les différents niveaux lors de la préparation de l'expérience) ou qualitatifs (par exemple, l'opérateur et on

parle alors de modalité). L'analyse de variance permet de vérifier que les effets définis comme influents pour la réponse étudiée sont réellement associés au facteur étudié et qu'ils ne sont pas les résultats d'une variabilité naturelle du phénomène étudié (test pour déterminer si les variations induites par un facteur A sur la réponse sont aléatoires ou non). En fonction des résultats de cette analyse, si un facteur est déclaré influent, on peut soit modifier ou bloquer les niveaux ou les modalités pour rendre la méthode insensible, soit inclure dans l'incertitude l'effet du ou des facteurs influents. L'étude des effets de plusieurs facteurs et leurs interactions éventuelles, en provoquant de manière contrôlée des variations simultanées de ces facteurs, permet de modéliser les réponses et de définir des domaines de tolérances, ce qui fait partie de l'évaluation de la robustesse. Il est alors possible de calculer les effets et interactions à partir des réponses mesurées. On peut aussi en tirer des conclusions quant aux facteurs qui sont critiques et éventuellement adapter la procédure. L'étude de la robustesse de la méthode se situe donc entre les phases de développement et de caractérisation de la méthode,

- La justesse est l'étroitesse de l'accord entre la valeur moyenne obtenue à partir d'une large série de résultats d'essais et une valeur de référence acceptée. Pour évaluer la justesse, il faut donc disposer de références. C'est au travers de cette caractéristique que l'on assure la traçabilité aux unités du Système International (SI). L'attitude d'un laboratoire est généralement d'essayer d'améliorer la méthode, jusqu'à ce que cet écart devienne faible par rapport aux incertitudes sur la mesure et sur la valeur de référence. D'une manière générale, on n'applique pas de corrections de justesse. L'objectif lors de la mise au point de la méthode est de vérifier qu'il n'y a pas d'erreur systématique significative.

Les caractéristiques énoncées ci-dessus sont les briques élémentaires de la démonstration de la consistance physique de la méthode. Ces briques peuvent être toutes ou partiellement utilisées pour la démonstration, voire complétées par d'autres briques, basées sur des outils statistiques notamment. Les outils statistiques sont des outils de diagnostic indispensables pour caractériser une méthode et la valider. Mais il faut éviter la confusion entre les outils de diagnostic (que sont les tests statistiques) et les critères de décision (qui sont les performances minimales attendues pour le système, donc, par définition subjectifs). Par exemple, ce n'est pas parce que, statistiquement, on ne peut pas rejeter l'hypothèse selon laquelle la valeur donnée par un opérateur est celle de référence que l'opérateur peut être considéré comme juste. Il faut aussi que la dispersion de ses résultats soit acceptable. A l'inverse, si un opérateur donne des résultats très peu dispersés et que l'on montre statistiquement un écart entre son résultat et la valeur vraie, l'opérateur ne sera rejeté que si cette différence est jugée rédhibitoire.

La traçabilité fait partie des preuves à apporter concernant la validité de la

mesure. La traçabilité d'un résultat de mesure ou d'une valeur de référence permet d'assurer que le résultat est comparable à d'autres par le biais d'un système de référence commun, tel que défini dans le paragraphe précédent (Cf paragraphe 1.3.2). La traçabilité se fait par rapport à un résultat ou à une valeur, pas à une organisation ou à une méthode ou à un calibre. La traçabilité est la propriété du résultat d'un mesurage ou d'un étalon telle qu'il puisse être relié à des références déterminées, généralement des étalons nationaux ou internationaux par l'intermédiaire d'une chaîne ininterrompue de comparaisons ayant toutes des incertitudes déterminées.

Le système qualité sert d'armature pour réaliser cette démonstration, s'assurer que tous les aspects importants de la démonstration ont été pris en compte et que toutes les dispositions requises pour la mise en œuvre correcte de la méthode sont déployées sur le terrain. Il est mis en place pour répondre au besoin de pouvoir garantir la fiabilité et la traçabilité des résultats d'analyse fournis au demandeur. Ces garanties reposent sur trois piliers que sont la qualification des appareillages, le test de conformité réalisé en cours d'analyse et la validation de méthode. La qualification d'un instrument représente l'ensemble des opérations, tests et résultats, qui servent à vérifier ses performances. On peut distinguer la qualification de l'installation (vérification des pièces et manuels, des connexions diverses,...), la qualification opérationnelle (vérification que chaque module remplit les spécifications constructeur (répétabilité, justesse, linéarité,...) et enfin la qualification des performances (vérification des performances dans des conditions proches de celles de l'utilisation de routine). Les tests de conformité sont les tests permettant de vérifier que, pendant l'analyse, les performances du système sont compatibles avec le cahier des charges de la méthode. Ces tests sont souvent réalisés en insérant des échantillons dans la séquence analytique, pour évaluer les paramètres critiques impactant directement la méthode et dont toute dérive ferait sortir de son domaine de validité le moyen de mesure.

1.4 L'évaluation de l'activité radiologique des colis à caractériser

La traduction sur le terrain des éléments théoriques présentés dans les paragraphes précédents se décline sous plusieurs formes (appareillages et méthodes de mesures) ainsi qu'en plusieurs applications. Ce paragraphe présente cette traduction au travers d'un état de l'art de la mesure nucléaire appliquée aux déchets nucléaires mais pouvant être étendu à d'autres types d'objets nucléaires.

L'exploitation industrielle de l'énergie nucléaire revient à transformer l'énergie nucléaire potentielle, contenue dans les matières fissiles, essentiellement en énergie

thermique. Elle repose sur le même principe de base que n'importe quelle autre unité de production d'énergie, à savoir, extraire le combustible, le valoriser, le consommer, et enfin, si possible, le recycler et traiter les déchets produits. Toutes les étapes, depuis l'extraction du minerai contenant les matières fissiles, jusqu'au conditionnement des déchets, en passant par l'exploitation en réacteur du combustible nucléaire, sont communément regroupées sous le nom générique de cycle du combustible. Comme toutes les activités humaines, l'industrie nucléaire produit donc des déchets. L'une des caractéristiques majeures de ces derniers est leur radioactivité. La radioactivité décroît dans le temps, mais, si la période radioactive de certains éléments est relativement courte (de quelques jours à quelques années), pour quelques autres éléments, cette même période s'exprime en dizaines ou même en centaines de milliers d'années. La gestion des déchets nucléaires prend en compte cet aspect singulier.

Les déchets radioactifs sont caractérisés par :

- le type de rayonnement émis. Pour rappel, les différents rayonnements émis sont :
 - le rayonnement alpha, se traduisant par l'émission d'un noyau d'hélium, très peu pénétrant, qu'une simple feuille de papier suffit à arrêter ;
 - le rayonnement bêta, un peu plus pénétrant, mais, qu'une feuille d'aluminium peut arrêter, qui correspond à la transformation, dans le noyau :
 - soit d'un neutron en proton, radioactivité β^- , caractérisée par l'émission d'un électron e^- ,
 - soit d'un proton en neutron, radioactivité β^+ , caractérisée par l'émission d'un positon e^+ ; elle ne se manifeste que dans des noyaux radioactifs produits artificiellement par des réactions nucléaires,
 - le rayonnement γ , à la différence des deux précédents, n'est pas lié à une transmutation du noyau mais à sa désexcitation. Il se traduit par l'émission d'un rayonnement électromagnétique. L'émission γ peut se manifester seule ou en accompagnant la radioactivité α ou β . Le rayonnement γ a un pouvoir de pénétration beaucoup plus fort que le rayonnement α ou β et nécessite, par conséquent, des protections beaucoup plus importantes.
 - l'émission neutronique qui se traduit par l'émission d'un ou plusieurs neutrons issus de fission spontanée ou par réaction (α, n).
- l'activité. Une source radioactive est aussi caractérisée par l'activité du radionucléide qu'elle contient, c'est à dire le nombre de noyaux qui se désintègrent spontanément par seconde. L'activité est exprimée en becquerel (Bq).
- la période radioactive des radionucléides. Ce terme désigne le temps nécessaire pour qu'un radionucléide perde la moitié de sa radioactivité. Dans le cas des déchets nucléaires, il s'agit de la caractéristique la plus importante car, au fond, la question fondamentale que se posent tous ceux qui sont concernés par

un éventuel stockage est bien de savoir combien de temps un corps radioactif reste dangereux.

La majorité des éléments radioactifs contenus dans les déchets nucléaires sont générés de manière directe ou indirecte par les réactions qui se déroulent au cœur des réacteurs. Les principaux déchets sont constitués par les produits de fission. Cette catégorie recouvre une très grande variété d'émetteurs bêta d'une durée de vie très variable. Les principaux sont le césium 137, le strontium 90 et le ruthénium 106. Les produits de fission restent piégés dans le combustible où ils se sont formés, ou sont retenus par la gaine qui contient ce combustible. Ils représentent environ 4 % du poids du combustible initial.

La seconde catégorie de déchets est constituée par les transuraniens, notamment les actinides, qui résultent de la capture de neutrons sur les noyaux d'uranium et qui donnent aussi naissance à des éléments plus lourds que l'uranium et qui n'existaient pas à l'état naturel : le neptunium, le plutonium, l'américium, le curium... Ces radionucléides émettent, en général, des rayonnements alpha, et leur durée de vie est longue, et parfois même, très longue (plusieurs milliers d'années).

La dernière catégorie de déchets nucléaires est constituée par tous les matériaux devenus radioactifs par capture neutronique ou d'autres réactions d'activation de type (n, p) , $(n, 2n)$. C'est le cas des gaines et embouts métalliques des assemblages et des matériaux des cuves et des circuits. Ces éléments radioactifs, émetteurs de rayonnement bêta sont appelés produits d'activation, et leur période est, en général, relativement courte.

Les opérations de retraitement des matières nucléaires génèrent elles aussi des déchets ainsi que toutes les interventions, de réparation, d'entretien ou d'épuration, que ce soit dans les centrales et dans les mines. Les interventions entraînent une contamination de matériaux divers (vêtements, outils, filtres), qui une fois contaminés, deviennent eux aussi des déchets qualifiés de déchets technologiques.

L'évaluation de l'activité des déchets a essentiellement trois objectifs :

- a) permettre une gestion adaptée des déchets (tri, procédés de traitement, mode de conditionnement, ...),
- b) répondre aux spécifications applicables au colis, à son transport et à son entreposage ou stockage,
- c) répondre à d'autres impératifs d'exploitation (bilan matière, gestion des matières nucléaires, criticité, ...).

Le cas des déchets nucléaires a été décrit en premier car il est le premier consommateur, en quantité, de moyens de caractérisation nucléaire non destructive. Par contre, comme mentionné dans le point c) de la liste précédente, la mesure nucléaire entre aussi dans l'établissement des bilans matière et de la gestion de la criticité. Dans ces situations, les valeurs quantitatives et leurs incertitudes associées sont utilisées soit pour alimenter les bilans matières soit pour garantir le respect des

prescriptions techniques imposant les limites (en termes de masse maximale admissible de matière fissile) à ne pas dépasser. Les matières fissiles sont constituées par les radionucléides ayant une probabilité élevée de fission après l'absorption d'un neutron d'énergie thermique. En toute rigueur, ce n'est pas le noyau appelé fissile qui subit la fission mais le noyau composé formé suite à la capture d'un neutron. Les principaux nucléides fissiles suivis sont l'uranium 235, le plutonium 239 et le neptunium 237.

Les méthodes d'évaluation de l'activité des déchets peuvent être classées en deux grands types : les méthodes destructives et les méthodes non destructives.

1.4.1 Les méthodes destructives

Comme leur nom l'indique, ces méthodes violent l'intégrité du colis, c'est à dire qu'elles nécessitent le prélèvement d'échantillons. Ces échantillons sont généralement dissous, si ce n'est déjà un prélèvement d'une solution. Ensuite, une analyse physique ou chimique est réalisée. Même si nous ne détaillerons pas ici les différentes méthodes et appareils de chimie analytique associés, car cela est hors du champ de cette habilitation à diriger des recherches, nous citerons juste les principales méthodes utilisées pour la caractérisation des matières nucléaires : spectrométrie de masse par *torche à plasma* (*Inductively Couple Mass Spectrometry, ICP-MS*), *spectrométrie d'émission optique* (*Inductively Couple Atomic Emission Spectrometry, ICP-AES*), *spectrométrie UV*, *spectrométrie de masse à thermo-ionisation (TIMS)*,...

Seule sera ici détaillée la spectrométrie alpha, car cette méthode fait partie de mes travaux de recherche.

La spectrométrie alpha

La spectrométrie alpha est essentiellement utilisée dans l'industrie nucléaire pour les mesures environnementales. Elle est classée comme méthode destructive puisqu'un prélèvement est systématiquement fait, suivi ou non d'un traitement chimique afin d'obtenir un dépôt fin (de quelques microns), généralement sur coupelle. Ce dépôt est mesuré sous vide ou dans le milieu détecteur (gaz). Le fait de mesurer sous vide ou dans le milieu détecteur est imposé par le très faible libre parcours moyen des particules alpha dans la matière. Les détecteurs utilisés sont les détecteurs silicium (mesure sous vide) et les chambres à grille (milieu détecteur gaz).

La mesure alpha présente une grande sensibilité pour les actinides, du fait que la majeure partie des actinides sont des émetteurs alpha.

Grâce à l'échantillonnage, ces méthodes sont très précises et très sensibles (limite de détection faible). Bien qu'elles soient les plus usitées pour le dosage des actinides,

elles ont cependant des inconvénients :

- elles génèrent de nouveaux déchets secondaires déchets qu'il n'y avait pas au départ ;
- elles sont longues et coûteuses ;
- elles soulèvent le problème de la représentativité de l'échantillon prélevé par rapport au volume total du colis.

C'est pour cela que des méthodes rapides, faciles à mettre en œuvre, ne générant pas de déchets supplémentaires, et pouvant sonder la totalité du colis, ont été ou devront être développées. L'utilisation de telles méthodes est aussi motivée par le fait que dans certains (beaucoup ?) de cas le prélèvement d'échantillon est impossible voire hasardeux (fûts de colis scellés, boîte à gants avec procédé).

1.4.2 Les méthodes non destructives

Les mesures non destructives sont basées sur la mesure de radiations, émises spontanément ou induites, au moyen d'une source extérieure au colis à caractériser. Ce sont des mesures non intrusives puisque l'intégrité de l'objet à étudier n'est pas violée. Leur inconvénient majeur, par rapport aux méthodes destructives, est le fait qu'elles sont généralement moins sensibles. On parle de méthodes actives lorsque les mesures sont réalisées à l'aide d'une source de rayonnement externe au colis à caractériser, passives lorsque les mesures utilisent uniquement les radiations émises par le colis.

La pesée

L'utilisation de la pesée est largement répandue et privilégiée sur la matière brute ou lorsque les caractéristiques physico-chimique du produit sont maîtrisées et permettent de déterminer la masse de matière nucléaire en jeu. Cette méthodologie est de loin la plus simple à mettre en œuvre, la plus fiable et robuste, la plus rapide des méthodes non destructives d'estimation de l'activité (des masses) des matières nucléaires. A l'exception des autres méthodologies décrites dans ce paragraphe, la pesée est très sensible (limite de détection faible) avec des incertitudes associées faibles. Dès qu'elle peut être mise en œuvre, c'est la méthode qui est privilégiée. Son principal inconvénient est qu'elle n'est pas sélective vis-à-vis des radionucléides entre eux et de la matrice par rapport aux radionucléides (impossible de distinguer la contamination du support de la contamination).

La validité et les domaines de validité de cette méthode sont largement décrits dans la littérature normative.

Les méthodes passives

Elles ne nécessitent pas de source de rayonnements externe. Les rayonnements émis par les déchets nucléaires présents dans le colis à caractériser sont suffisamment énergétiques pour avoir un pouvoir de pénétration dans la matière suffisant et suffisamment intenses pour qu'ils puissent être mesurés. Si la mise en place de telles méthodes est simple, la mesure peut être fortement perturbée par les caractéristiques physico-chimiques des matériaux traversés, par les rayonnements parasites, altérants ainsi la représentativité des mesures. Aussi, l'atténuation, la diffusion ou l'absorption seront autant de phénomènes physiques impactant le résultat de mesure. Les éléments chimiques étrangers non répertoriés, les enchevêtrements de matériaux non identifiés ou mal définis, fausseront également les résultats.

Ces méthodes sont basées sur la détection des rayonnements qui sortent le plus facilement des colis, à savoir, essentiellement, les neutrons et les rayonnements gamma. Ces méthodes sont :

La spectrométrie gamma

Cette méthode est basée sur la mesure des rayonnements γ , qui s'effectue avec un dispositif permettant de les trier en fonction de leur énergie (raies γ). C'est une méthode sélective. Les détecteurs à semi-conducteur de type germanium hyper pur (GeHP), ou dopés au lithium (Ge(Li)), permettent d'obtenir des spectres γ de haute résolution, c'est à dire qu'ils ont une bonne capacité de séparation de raies d'émission γ d'énergies proches. L'analyse des spectres obtenus permet d'identifier les radionucléides présents dans le colis et de déterminer leurs quantités. La principale limitation de la spectrométrie γ est l'atténuation des rayonnements γ dans les matériaux (matrice, enrobage) qui entourent les radionucléides à doser. La mesure est donc très sensible à la densité électronique de la matrice et à la répartition des émetteurs γ dans la matrice (centre ou périphérie du colis), ainsi qu'aux rayonnements parasites (diffusés, autres sources γ que celles recherchées).

Le comptage neutronique passif

Le comptage neutronique passif regroupe deux types de comptage :

- le comptage total. Ce comptage collecte tous les neutrons issus de l'objet à caractériser. Cette caractéristique le rend très sensible aux réactions parasites (de type (α, n) par exemple) et très peu sensible à la nature de l'émetteur neutronique en présence. La sélectivité de la méthode par rapport au comptage par coïncidence est moindre.
- le comptage par coïncidence. Ce comptage utilise la propriété que, suite à une fission spontanée, plusieurs neutrons sont émis par « bouffée ». Ainsi, le nombre de neutrons comptés simultanément est une signature du radionucléide

ayant fissionné. Aussi, si plusieurs neutrons sont comptés simultanément (coïncidence temporelle), alors c'est la signature de la présence de matière fissile spontanément et différentiable des réactions parasites de type (α, n) pouvant se produire dans l'environnement de mesure.

Dans l'industrie nucléaire, l'émission neutronique est principalement due aux fissions spontanées que subissent certains transuraniens (U, Pu, Cm,...) ou aux neutrons issus de réactions à seuil de type (α, n) .

La principale difficulté réside dans l'interprétation de la mesure car le comptage neutronique n'est pas sélectif en énergie. Ainsi, il est très difficile de différencier un neutron issu d'une réaction (α, n) d'un neutron issu d'une fission spontanée. Il est encore plus complexe de différencier un neutron issu d'une fission spontanée du plutonium 240 d'un neutron issu d'une fission spontanée du curium 244. Seules les techniques de comptage par coïncidence et par multiplicité apporte une réponse à ces cas de figure.

Le comptage neutronique passif est utilisé lorsque l'atténuation des γ est trop forte ou lorsque les radionucléides à doser sont de forts émetteurs de neutrons. Ceci se prête particulièrement bien aux dosages des transuraniens (Pu, Cm).

La calorimétrie

La calorimétrie est utilisée comme technique de mesure nucléaire non destructive pour quantifier les matières nucléaires. Cette méthode utilise la propriété des matières nucléaires à dégager de la chaleur. Cette activité thermique est indépendante des matériaux et de la matrice dans lesquels se situe la matière à caractériser. Cette caractéristique est la grande force de la calorimétrie. Le seul bémol réside dans le fait qu'il ne faut qu'aucune réaction endo ou exothermique n'ait lieu dans le colis à caractériser pendant la durée de la mesure.

La mesure calorimétrique doit être combinée avec une mesure de composition isotopique ou un ratio entre radionucléides en présence afin de pouvoir déterminer précisément les activités de chaque radionucléide présent dans le colis. En effet, la calorimétrie détermine une puissance thermique globale (totale) dégagée par le colis à caractériser. Cette puissance thermique est directement reliée à l'activité radiologique totale du colis. L'information sur la composition isotopique sert donc à répartir correctement entre chaque radionucléide l'activité radiologique.

Les principaux inconvénients de la calorimétrie sont, à l'heure actuelle, le coût élevé de l'appareil de mesure, son absence de sélectivité par rapport aux radionucléides à caractériser et la durée de la mesure. Par contre, sa simplicité de mise en œuvre et sa robustesse font que l'incertitude finale associée au résultat est principalement due à la détermination de la proportion isotopique ou sur le ratio appliqué.

La **spectrométrie X** est une technique de mesure que nous ne détaillerons pas ici car elle ne fait pas partie de mes travaux de recherche.

Les méthodes actives

Pour les mesures actives, le colis à caractériser est irradié par une source externe. On peut ainsi :

- a.) soit exciter un élément particulier à doser puis mesurer les rayonnements de désexcitation émis (X, γ , neutrons, ...),
- b.) soit mesurer l'absorption des rayonnements de la source externe dans l'échantillon (mesures de transmission).

Bien que plus lourdes à mettre en œuvre, plus coûteuses, les méthodes actives permettent d'atteindre des sensibilités plus élevées que les méthodes passives. Souvent elles permettent de stimuler une émission qui permet de caractériser les matières d'intérêt alors que l'émission spontanée de ces matières est insuffisante ou masquée par des bruits parasites. Elles sont par exemple utilisées pour la détection de faibles quantités de transuraniens dans des colis de déchets solides. Là aussi, on peut distinguer deux grandes familles de mesures, suivant que le faisceau interrogateur est composé de neutrons ou de photons :

L'interrogation neutronique⁶

L'interrogation neutronique consiste à irradier l'objet à l'aide d'une source de neutrons afin de provoquer des fissions, et pouvoir ainsi détecter des particules pénétrantes (neutrons ou photons) émises lors des fissions induites. Ces particules peuvent être promptes ou retardées. C'est ce qui permet de différencier les techniques basées sur la détection des neutrons prompts de celles basées sur la détection des neutrons et γ retardés.

L'interrogation neutronique peut s'avérer inopérante pour des colis denses et riches en hydrogène ou absorbants neutroniques (comme le bore, par exemple) car le flux de neutrons interrogateurs est alors fortement atténué.

L'interrogation photonique

Cette méthode consiste à irradier l'objet avec une source externe et intense de photons. Les différentes techniques existantes se distinguent par la nature des sources émettrices utilisées et les réactions nucléaires induites.

6. Ce mémoire n'aborde que les méthodes actives pour la caractérisation des matières nucléaires, pas celles pour la caractérisation élémentaire par activation neutronique (mesure des gamma de capture ou diffusions inélastiques) voire photonique (réactions photonucléaires).

La technique basée sur la photofission permet aussi bien de doser des actinides que des éléments plus légers. L'avantage majeur, par rapport aux autres techniques de dosage des émetteurs α , est d'utiliser les photons de haute énergie capables de sonder le cœur même du colis de déchets. Là aussi cette méthode est citée à titre informatif car je n'ai travaillé dessus que durant ma thèse de doctorat.

Les mesures de transmission photonique ne permettent pas de réaliser des mesures de l'activité des colis, mais permettent de mesurer des densités de matériaux et des concentrations de solutions, ou de tester qualitativement la présence ou non de matière, de façon non intrusive. La plus répandue de ces techniques est la densitométrie par transmission photonique. Cette technique permet d'obtenir des cartes d'atténuation de l'objet à examiner.

La double interrogation

La double interrogation utilise simultanément l'interrogation neutronique et photonique. Le principe de la méthode consiste à générer, à partir d'une source de photons de bremsstrahlung, des neutrons par réaction (γ, n) sur une cible de béryllium. Le flux interrogateur est donc composé d'un flux élevé de photoneutrons et de photons de haute énergie. L'interrogation neutronique intervient quelques centaines de microsecondes après l'interrogation photonique. En effet, les réactions de photofission ont lieu instantanément après le flash gamma, tandis que les photoneutrons créés dans le béryllium doivent être thermalisés pour que leur probabilité de provoquer une fission soit maximale. Les neutrons prompts et retardés issus de ces deux modes de fission ne seront pas comptabilisés aux mêmes moments. Cette méthode est ici simplement citée car elle ne fait pas partie de mes travaux de recherche.

Chapitre 2

Synthèse des activités de recherche

Ce chapitre résume mes activités de recherche que je juge les plus significatives et que j'ai menées depuis mon doctorat. Comme présenté dans les paragraphes précédents, tous ces travaux de recherche tendent à définir et développer des systèmes de mesures ou des méthodologies de mesures nucléaires non destructives.

2.1 Conception de poste de mesure neutronique avec source d'interrogation

2.1.1 PACCMAN

Principe de l'interrogation neutronique active avec un générateur de neutrons

Le dispositif de mesure PACCMAN, acronyme de Poste ACCostable de Mesure Active Neutronique, a été défini et spécifié afin de mesurer par interrogation neutronique active la masse de matière fissile contenue dans les poubelles de déchets [27] à l'atelier ATALANTE de Marcoule. La quantification de cette matière fissile a pour objectif de permettre le passage de la zone comprise entre deux cellules d'exploitation. Il permet de répondre notamment à une contrainte de criticité. La contamination de ces poubelles de déchets provient du traitement des combustibles irradiés issus de réacteurs nucléaires. Les déchets contiennent donc potentiellement des quantités significatives de matières fissiles qu'il faut gérer au titre de la maîtrise du risque criticité. Ces déchets sont aussi fortement contaminés par les produits de fission et d'activation générés par l'irradiation du combustible. Cette contamination parasite rend inopérantes et inadaptées les méthodes passives classiques de quantification de la matière fissile dans les déchets. C'est pourquoi la solution retenue est une solution active. L'interrogation neutronique active répond à ce

besoin.

La méthode consiste à irradier l'échantillon à caractériser grâce à une source de neutrons très intense de façon à créer des réactions de fission (n,f) dans les matériaux fissiles présents. Le signal ainsi généré par des fissions induites permet de mesurer la concentration en noyaux fissiles (principalement ^{235}U , ^{239}Pu et ^{241}Pu) de l'échantillon. Ces réactions se produisent essentiellement pour des neutrons incidents dont l'énergie se situe dans le domaine thermique, les neutrons émergents ayant pour leur part une énergie élevée (de l'ordre de 2 MeV). Le dispositif habituellement utilisé est constitué d'une cavité de mesure entourée de détecteurs de neutrons. La source interrogatrice se présente sous forme d'un générateur électrique produisant des neutrons de 14 MeV, l'émission se faisant dans un mode pulsé. Après chaque impulsion, d'une durée typique de 130 μs , les neutrons produits par le générateur interagissent avec les matériaux constituant la cellule de mesure et perdent leur énergie par diffusion. Après un court laps de temps, typiquement de l'ordre de 500 μs , la quasi-totalité des neutrons restant ont une énergie résiduelle de l'ordre de 25 meV (ils sont donc thermiques). Ce bain thermique va subsister durant quelques millisecondes pendant lesquelles les réactions de fission se produiront au sein de l'échantillon. Durant cette phase, la mesure consistera à ne détecter dans le dispositif que les neutrons de haute énergie caractéristiques des réactions recherchées. La discrimination en énergie des neutrons est réalisée grâce à l'emploi de détecteurs insérés dans des blocs de détection perméables aux neutrons rapides et rendus imperméables aux neutrons thermiques par l'utilisation d'un blindage réalisé en matériau neutrophage (cadmium, B_4C , etc...). Cette phase de mesure étant terminée (disparition du flux interrogateur), la génération d'une nouvelle émission peut intervenir. Le cycle irradiation-mesure est répété avec une fréquence de récurrence de 400 Hz.

Dans l'exemple de la figure 2.1.1, le cas physique consiste à mesurer l'ensemble des neutrons issus des fissions induites dans l'échantillon étudié. Les signaux caractéristiques sont présentés sur la figure 2.1.1. Le cycle d'irradiation-mesure a une durée typique de 8 ms (fonctionnement du générateur de neutrons à 125 Hz) et présente trois zones remarquables :

Zone 1 : réponse des détecteurs aux neutrons du générateur en cours de thermalisation. Durant cette période, les neutrons rapides issus des fissions sont indiscernables de ceux issus du générateur.

Zone 2 : elle constitue la zone de mesure avec disparition de la contribution des neutrons rapides issus de générateur. La réponse des détecteurs correspond, pour l'essentiel, aux neutrons de fission provenant de l'échantillon mesuré. Une faible part du signal correspond au comptage de neutrons parasites et constitue un bruit de fond actif. La courbe montre l'évolution du signal en présence de matière fissile dans l'échantillon mesuré.

Zone 3 : le signal mesuré dans cette zone correspond au bruit de fond résiduel. La quasi-disparition du flux thermique interrogateur met fin au processus de fission. Le signal enregistré concerne la détection de neutrons provenant soit de l'émission neutronique passive de l'objet mesuré, soit du bruit neutronique ambiant, soit d'événements extérieurs au dispositif de mesure, soit de neutrons produits par des voies « exotiques » telles que des interactions entre les rayonnements cosmiques et les matériaux constituant la cellule ou son environnement immédiat. Cette composante est en principe constante. C'est aussi dans cette zone que se trouvent les neutrons retardés de fission. Cette zone sera la zone de mesure dans le cadre d'un comptage de neutrons retardés.

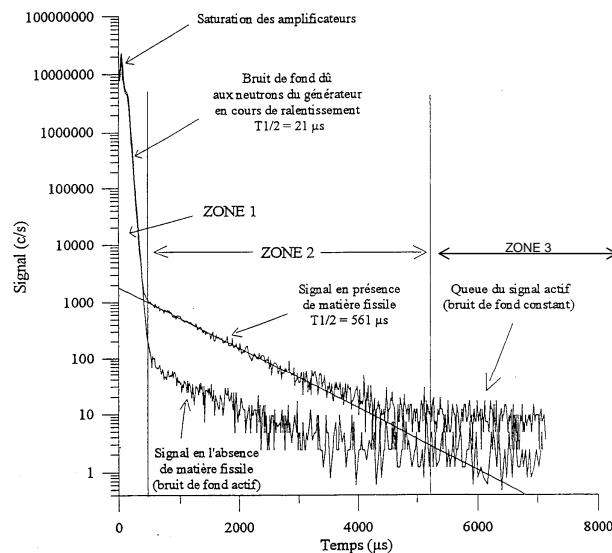


FIGURE 2.1.1: Allure temporelle du signal en mesure active des neutrons prompts

Dispositif PACCMAN

Dans la définition de PACCMAN, nous insistons sur la modularité du dispositif de mesure et nous menons cette étude afin qu'il soit possible d'utiliser d'autres méthodes de comptage neutronique, tel que le comptage de neutrons retardés ou encore des coïncidences entre les neutrons prompts de fission. Cependant, nous ne détaillerons pas ces méthodes dans ce paragraphe car le but premier de PACCMAN reste le comptage total en actif des neutrons prompts.

Une représentation schématique de PACCMAN est donnée par la figure 2.1.2. La forme conceptuelle de base de PACCMAN est l'habillage d'un château de transfert RD 10 avec un dispositif de mesure neutronique actif. Cette base permet de garantir le maintien des protections biologiques et l'efficacité des dispositifs dynamiques de confinement du système PADIRAC. L'autre atout est de pouvoir ainsi accoster PACCMAN à n'importe quel standard PADIRAC. Les déchets à mesurer sont conditionnés dans des poubelles de type PODEC (POubelles DEChets). Ces déchets triés peuvent être de plusieurs types : verres, plastiques, coques, métaux divers. Les masses maximales par PODEC sont de l'ordre de 5 kg de déchets. La masse maximale de matière fissile attendue en fonctionnement normal est de 1 g par PODEC. Par conséquent, l'objectif est de pouvoir détecter une quantité inférieure à 500 mg avec une incertitude maximale de 100%. Les méthodes de mesure mettant en œuvre l'interrogation neutronique active par détection de neutrons prompts ont des performances sensibles aux 4 paramètres principaux [3] listés dans les paragraphes suivants.

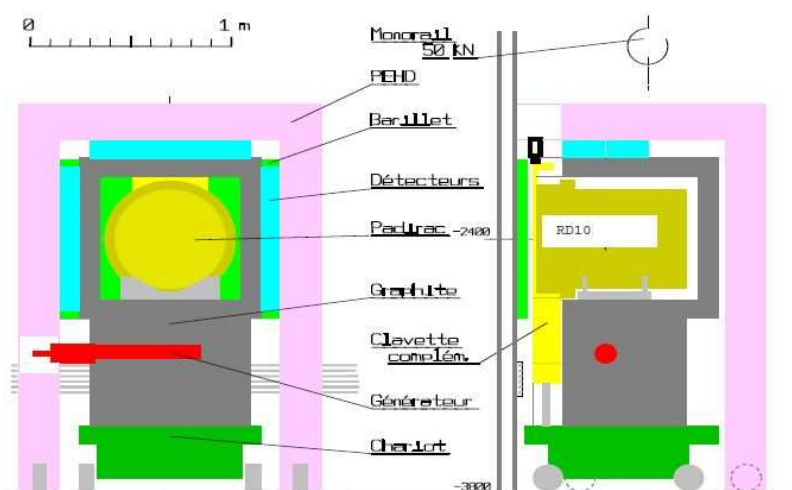


FIGURE 2.1.2: Vue du dispositif PACCMAN accosté (coupe médiane)

Temps de vie des neutrons dans les blocs de détection

Les neutrons émis par le générateur subissent une phase de ralentissement au cours de laquelle ils perdent leur énergie par diffusions successives sur les matériaux constituant la cellule de mesure, d'une part, et l'échantillon à caractériser, de

l'autre. Ce signal, qui s'ajoute à celui provenant des fissions induites dans l'échantillon, constitue un bruit de fond et disparaît exponentiellement avec une période de décroissance T , le temps de demi-vie (temps au bout duquel le signal est divisé par deux). Une disparition rapide permet d'« avancer » le début de la phase de comptage et de bénéficier d'un flux interrogateur plus important.

Rendement de détection

Ce paramètre caractérise l'efficacité de détection du dispositif, c'est-à-dire le nombre de neutrons détectés parmi ceux qui sont émis dans l'échantillon. Il dépend bien sûr de la source considérée (position et spectre en énergie) ainsi que des caractéristiques du dispositif de mesure, en particulier du type, du nombre et de la position des détecteurs utilisés et de la géométrie des blocs détecteurs (quantité de polyéthylène, d'absorbants (cadmium, B_4C ,...)).

Taux de fission

Ce paramètre caractérise le nombre de fissions induites dans une masse donnée de matière fissile présente dans l'échantillon. Sa valeur est fonction de la nature des matériaux constituant l'échantillon ainsi que de la position spatiale considérée. Il faut le voir comme le produit de convolution du spectre en énergie des neutrons interrogateurs par la section efficace de fission des divers constituants du contaminant. Classiquement, ce paramètre est évalué comme le nombre de fissions produites par la matière répartie de façon homogène ou en un point particulier de l'échantillon mesuré par unité de temps.

Le bruit de fond

Il s'agit de la part de signal qui est enregistrée pendant la phase de comptage et qui ne correspond pas à des fissions induites dans l'échantillon considéré. Il comprend une partie passive (émission spontanée de l'objet, etc) et une partie active (photoneutrons, neutrons retardés, fuites des blocs de détection).

Le dispositif de mesure est composé :

- d'un générateur de neutrons, type GENIE 16T[1] de la société SODERN,
- d'un écran thermalisateur des neutrons rapides issus du générateur,
- de blocs de détection.

Dans cette étude, nous avons toujours privilégié la simplicité de réalisation mécanique. Cette simplicité répond à un double objectif de fiabilité et de réalisme économique. Ainsi, la réalisation de la cellule avec une géométrie cubique, interne et externe, simplifie grandement la conception tout en pénalisant peu les

performances. De plus, cette forme cubique est la mieux adaptée à la modularité souhaitée du dispositif de mesure. La conception de la cellule en elle-même est simple puisqu'elle se compose d'un modérateur et de blocs détecteurs, le tout entourant le château de transfert RD 10. Le dispositif est présenté sur la figure 2.1.2.

Performances du système de mesure

L'étude a consisté à dimensionner le dispositif de mesure en intégrant les considérations énoncées ci-dessus. Le dimensionnement a été exclusivement réalisé par modélisation numérique à l'aide du code de transport 3D de particules MCNP. Pour évaluer les performances du dispositif de mesure, il a été retenu la configuration la plus pénalisante en exploitation, à savoir, un PODEC rempli avec une matrice PVC homogène de densité $0,22 \text{ g/cm}^3$. Le rendement de détection du dispositif PACCMAN a été déterminé par simulation en modélisant complètement le dispositif de mesure représenté sur la figure 2.1.2. Nous obtenons ainsi un rendement de détection de 2 % en comptage total.

En première approximation, et en considérant que les bruits de fond passif et actif suivent une loi de Poisson, ce qui est bien vérifié pour le comptage total actif, la limite de détection est donnée par l'équation :

$$LD = 4 \left(\frac{1}{t_0} + \sqrt{B_a \left(\frac{1}{t_a} + \frac{1}{t_0} \right) + B_p \left(\frac{1}{t_p} + \frac{1}{t_0} \right)} \right) \quad (2.1.1)$$

avec

- B_a : bruit de fond actif (c/s) ;
- B_p : bruit de fond passif (c/s) qui est négligé dans notre étude ;
- t_0 : durée de mesure du colis en actif (s) ;
- t_a : durée de mesure du BDF actif (s) ;
- t_p : durée de mesure du BDF passif (s).

Les temps de mesure des bruits de fond actif et passif, et de la mesure active sont de 15 minutes. La matière est soit de l'uranium 235 (^{235}U), soit du plutonium 239 (^{239}Pu).

D'après ces considérations, nous obtenons ainsi une limite de détection en masse de :

- 26,4 mg pour ^{235}U
- 15,1 mg pour ^{239}Pu

Ces résultats montrent que l'objectif de détecter et doser 500 mg de matière fissile avec une erreur de 100% est largement atteint. De plus, nous avons établi par simulation que le fait de mettre le générateur de neutrons perpendiculaire à l'axe du PODEC (et non plus parallèlement comme défini ci-dessus) ne modifiait que

peu (de l'ordre de 3%) le résultat final. Cette donnée permet ainsi de modifier l'agencement du générateur en fonction de l'espace disponible autour de PACCMAN. Nous tenons à préciser que l'équation de la limite de détection donnée dans ce paragraphe est uniquement valable dans le cas d'un comptage global et sans monitoring du flux par un détecteur spécialement dédié.

Protection biologique

Dans ce paragraphe, nous donnons les résultats des simulations réalisées afin de donner un ordre de grandeur de la protection biologique pouvant être mise en place autour de PACCMAN. Afin de dimensionner cette protection, nous avons procédé par modélisation.

Les simulations montrent qu'une épaisseur de 60 cm de polyéthylène est nécessaire pour obtenir un débit de dose inférieur à $2,5 \mu\text{Sv/h}$ partout sauf derrière le générateur de neutrons. Aussi, derrière le générateur de neutrons nous avons rajouté, à l'intérieur de la protection biologique une épaisseur supplémentaire de 10 cm de polyéthylène (en fait une plaque de dimensions 30x30x10 cm) et à l'extérieur une autre épaisseur de 40 cm de polyéthylène (une plaque de dimensions 50x50x40 cm) dans le but d'obtenir un débit de dose inférieur à $2,5 \mu\text{Sv/h}$ à cet endroit. Nous signalons que, là encore, le fait de positionner le générateur de neutrons perpendiculairement à l'axe du PODEC, ne modifie pas le dimensionnement de la protection biologique. Cependant, du fait de l'adjonction d'une protection biologique en polyéthylène, un débit de dose gamma apparaît. Toutefois, ce débit de dose reste inférieur à $2,5 \mu\text{Sv/h}$.

Au vu de ces chiffres, la conception de PACCMAN s'est orientée vers une suppression de la protection biologique, remplacée par une zone d'exclusion.

Localisation de la matière dans le Pot de DEChets (PODEC)

L'effet de la localisation de la matière dans le PODEC apparaît lorsque de la matière, ponctuelle, est disséminée dans un coin ou l'autre du PODEC. Pour mettre en évidence cet effet, nous avons simulé une répartition de matière dans dix positions différentes dans le PODEC. La matière est une petite sphère d'uranium de 1 g. Ces dix positions représentent les cas les plus favorables ou défavorables pour le comptage.

Selon que la matière est proche ou loin des blocs détecteurs ou du générateur de neutrons, la réponse des détecteurs peut varier jusqu'à 67% (entre le cas le plus favorable et le moins favorable) mais au maximum de +35% (cas extrême positif) ou -19% (cas extrême négatif) par rapport à la configuration de référence qui est la répartition homogène de la matière dans le PODEC.

Amélioration des performances du dispositif PACCMAN

Dans ce paragraphe, l'étude porte sur une évolution pour réduire l'incertitude associée à la méconnaissance de la localisation de la matière fissile dans le PODEC. Cette incertitude a un impact significatif sur l'incertitude finale associée au résultat.

Les blocs, fixés aux parois de graphite, sont disposés de telle façon que les détecteurs ^3He soient centrés avec le PODEC contenu dans le château de transfert RD 10. Ces blocs sont disposés sur toutes les parois latérales de l'écran thermaliseur, sauf sur celles contenant le générateur de neutrons, soit trois parois.

Les blocs sont couplés deux à deux formant ainsi un continuum de détecteurs couvrant soit, la longueur totale du PODEC lorsque les détecteurs sont parallèles à l'axe du PODEC, soit le diamètre du PODEC lorsque les détecteurs sont perpendiculaires à l'axe du PODEC. Le fait de disposer certains blocs parallèlement et d'autres perpendiculairement à l'axe du PODEC permet de corriger les effets de localisation de la matière fissile dans le PODEC. C'est à partir de cette idée que l'étude de localisation de la matière dans le PODEC a été initiée. Cette localisation a pour objectif d'obtenir une correction de la répartition de la matière et ainsi maîtriser l'incertitude liée à cette localisation en vue de la réduire. Cette disposition nouvelle est présentée sur la figure 2.1.3. Pour comparaison, l'ancienne disposition est donnée sur la figure 2.1.4.

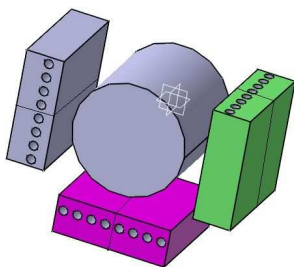


FIGURE 2.1.3: Nouvelle disposition des blocs détecteurs vis-à-vis du pot de déchets

Dans cette étude, il s'agit de reconstruire la distribution spatiale 3D d'une masse radioactive dans un PODEC. La source extérieure interrogatrice du fût est le faisceau de neutrons. Le plutonium ou l'uranium, en fissionnant, va alors, entre autre, émettre photons et neutrons. Ici seuls les neutrons seront pris en compte. La

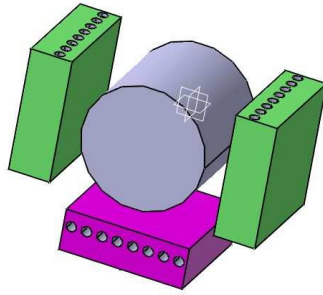


FIGURE 2.1.4: Ancienne disposition des blocs détecteurs vis-à-vis du pot de déchets

localisation sera effectuée grâce à la technique de tomographie d'émission. Le but de la tomographie par émission est d'estimer l'activité « locale » de la source de neutrons dans le colis à examiner. Pour cela, le colis est décomposé en un maillage dont chaque maille est appelée voxel (VOLUME ELement). Après reconstruction tomographique, chaque voxel donne l'estimation de l'activité présente à l'intérieur de son volume élémentaire. Ainsi, l'ensemble des voxels donnera l'activité totale du PODEC examiné.

Un détecteur hélium 3 ne permet pas d'obtenir la position de la source de neutrons sur sa longueur. Par contre, par comparaison des comptages des neutrons de chaque détecteur, on peut connaître la position de la source. De ce fait, on peut dire qu'un bloc détecteurs est capable de déterminer la position d'une source de neutrons suivant l'axe d'alignement de ses détecteurs. Ceci est représenté sur la figure 2.1.5. Ainsi, le pot de déchets a été découpé en 11 tranches de 37 voxels de 3 centimètres d'arête. Cela représente un nombre de voxel dans le PODEC de $11 \times 37 = 407$ voxels au total.

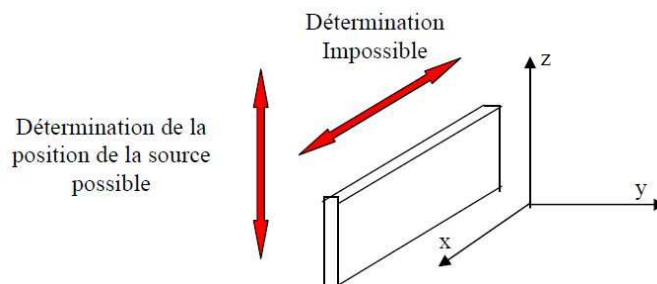


FIGURE 2.1.5: Localisation de l'émission neutronique par un bloc détecteurs hélium 3

Cette étude a démontré la faisabilité d'une telle localisation de matière par le dispositif PACCMAN dans un pot de déchets. Les résultats de cette étude sont présentés sur la figure 2.1.6. La figure 2.1.6 montre cependant qu'une localisation de matière centrale au PODEC est impossible.

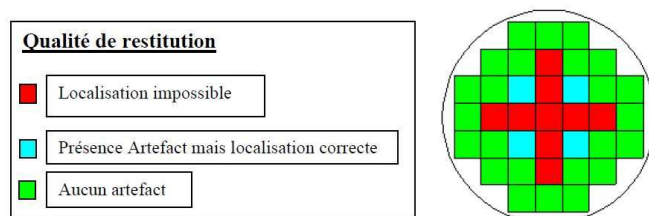


FIGURE 2.1.6: Performance de la localisation par tomographie

Pour remédier à cela, une première solution serait de supprimer les axes de symétrie existants par rapport aux voxels centraux (coloriés en rouge sur la figure). Ceci peut être réalisé en effectuant des rotations de 45° du PODEC. Ceci est représenté sur la figure 2.1.7. Cette étude s'est arrêtée à ce stade car le client n'a pas souhaité poursuivre dans cette voie.

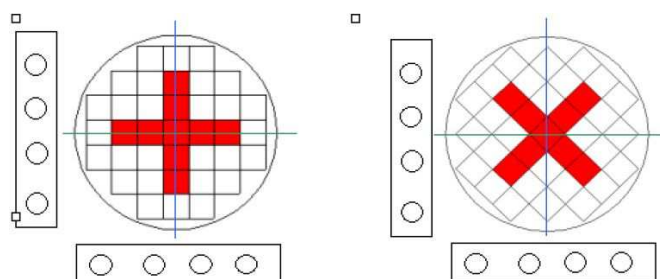


FIGURE 2.1.7: Amélioration finale de la reconstruction tomographique

Bilan

Le dispositif PACCMAN tel que dimensionné par cette étude est maintenant opérationnel à l'ATelier Alpha et Laboratoires pour ANalyses, Transuraniens et Etudes de retraitement (ATALANTE) du CEA Marcoule, sans l'option localisation par tomographie.

Cette étude a permis de définir un moyen de mesure modulable et transportable, compatible avec les standards de travail en cellule blindée (confinement matière, encombrement réduit du moyen de mesure, accostage à la cellule blindée). Il permet aussi de garantir les masses fissiles mises en œuvre vis-à-vis du risque criticité et du bilan matière et ce en présence de produits de fission et d'activation.

2.1.2 Dispositif CELINA

Le dispositif CELINA [11] a pour but d'étalonner les chambres à fission miniatures « rapides » à l'aide d'un générateur de neutrons fournissant un flux de neutrons de 14,1 MeV. En effet, avant la définition de ce système, l'étalonnage devait être systématiquement réalisé auprès de réacteurs de recherche « benchmarked ». Tout l'intérêt du système réside dans le fait que l'étalonnage pourra être réalisé sur un moyen plus facile à mettre en œuvre dont le flux est garanti par le monitoring du nombre de neutrons émis par le générateur de neutrons. Il évite ainsi une mise en place spécifique, en milieu extrême (réacteur), lourde et coûteuse. Lorsque j'ai pris ce projet, le service de Physique EXpérimental du département d'Études des Réacteurs avait déjà réalisé une étude de faisabilité du projet. Il attendait une étude de performance et une définition optimisée du dispositif pour répondre à leur besoin. L'objectif étant d'avoir toutes les garanties requises sur l'aptitude du dispositif à réaliser l'étalonnage de leurs chambres à fission.

Comme leur nom l'indique, les chambres à fission « rapides » doivent donner une réponse pour des neutrons ayant typiquement une énergie supérieure à 1 MeV. Aussi, afin d'obtenir des flux de neutrons de hautes énergies et les plus intenses, le dispositif CELINA est placé au plus proche du générateur de neutrons de type GENIE 36 de la société SODERN. Un tel générateur fournit environ $2 \cdot 10^9$ neutrons de 14,1 MeV par seconde. Pour cela, CELINA est directement intégrée dans la cellule de mesure PROMETHEE 6¹ (Cf figure 2.1.8) au contact de la cavité recevant le générateur de neutrons. Cependant, même si le dépôt de ces chambres est optimisé pour fournir un signal dans le domaine rapide, des impuretés fortement sensibles aux neutrons thermiques sont présentes dans ce dépôt. Or, l'objectif de la cellule PROMETHEE 6 est de thermaliser les neutrons et de maintenir ce flux thermique le plus longtemps possible dans la cavité de mesure. Aussi, afin de ne pas avoir de réponse due à l'interaction des neutrons thermiques avec les impuretés, une solution doit être mise en œuvre afin de couper ce flux thermique par un écran «

1. Afin de pouvoir autoriser l'incinération des déchets, il est nécessaire de garantir une activité α inférieure à un seuil de l'ordre de 50 Bq[α]/g de déchets bruts. Ceci correspond à une quantité de plutonium de l'ordre de 50 μ g dans un fût de 118 litres. L'installation PROMETHEE permet de répondre à ce besoin grâce à la technique d'interrogation neutronique par un générateur de neutrons de 14 MeV couplée à la détection des neutrons prompts de fission. Une vue de PROMETHEE est montrée sur la figure 2.1.8

thermique » (typiquement un matériau neutrophage dans les domaines thermiques et épithermiques). Par ailleurs, il convient de réduire la modération des neutrons interrogateurs par les matériaux constitutifs des tubes guides de CELINA. Le principe du dispositif retenu, inséré dans la cellule PROMETHEE 6 est présenté sur la figure 2.1.9 et la figure 2.1.10.

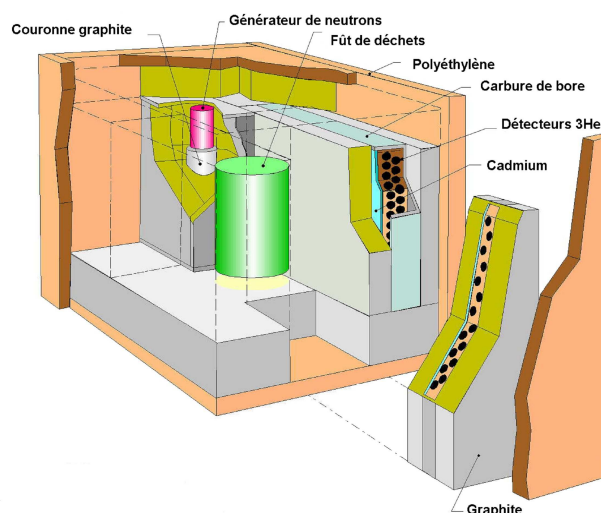


FIGURE 2.1.8: Vue du dispositif PROMETHEE 6

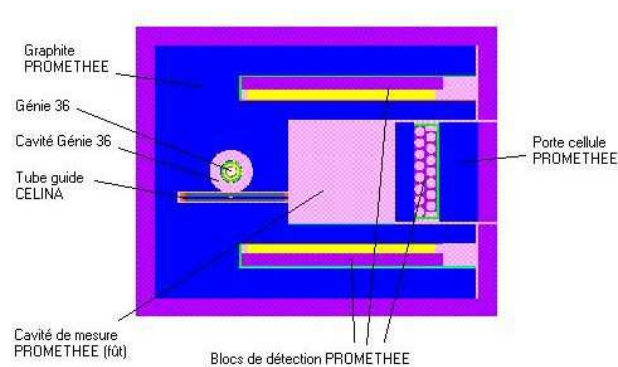


FIGURE 2.1.9: Vue de dessus du dispositif CELINA intégré dans PROMETHEE

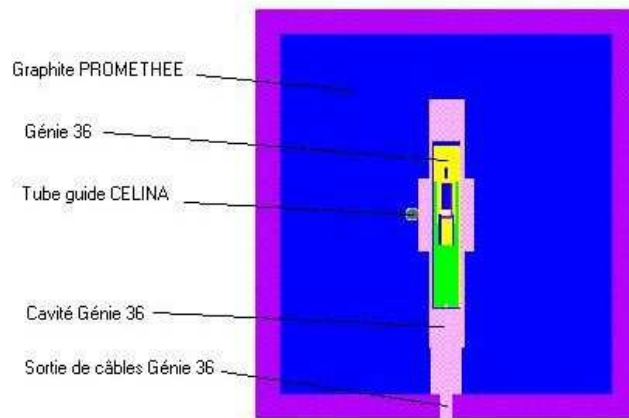


FIGURE 2.1.10: Vue de face du dispositif CELINA intégré dans PROMETHEE

Il a aussi été vérifié, par des calculs de simulation, que le flux neutronique pénétrant dans la chambre de plus grand diamètre (8 mm) est du même ordre de grandeur que celui traversant la chambre ayant le diamètre le plus petit (1,5 mm). Ceci est bien vérifié puisque la fluence neutronique (en neutrons/cm²/neutron source) est de :

- $(1,2034 \cdot 10^{-3} \pm 0,49\%)$ pour une chambre de 8 mm de diamètre,
- $(1,1950 \cdot 10^{-3} \pm 1,65\%)$ pour une chambre de 1,5 mm de diamètre.

Les simulations ont permis de définir et d'optimiser l'écran « thermique » des chambres à fission dites « rapides » du dispositif CELINA. Les tubes guides portant les chambres rapides seront ainsi équipés de cet écran destiné à couper le flux neutronique thermique pouvant perturber la réponse des chambres. La figure 2.1.11 présente la configuration finale du dispositif CELINA.

Toutefois, il est possible, afin de simplifier la réalisation mécanique de fabriquer cet écran « thermique » avec du polyéthylène boré et du cadmium uniquement, sans pertes conséquentes sur les caractéristiques finales de CELINA.

De plus, toujours par simulation, la réponse des chambres à fission soumises à une émission neutronique de $2 \cdot 10^9 n \cdot s^{-1}$ et d'énergie 14,1 MeV a été déterminée. Afin de déterminer cette réponse en fonction de l'énergie des neutrons, le spectre énergétique a été découpé en 5 grands groupes :

- groupe 1 : neutrons d'énergie comprise entre 0 et 0,625 eV,
- groupe 2 : neutrons d'énergie comprise entre 0,625 eV et 1 keV,
- groupe 3 : neutrons d'énergie comprise entre 1 keV et 1 MeV,
- groupe 4 : neutrons d'énergie comprise entre 1 MeV et 14,1 MeV,
- groupe 5 : somme sur tous les groupes énergétiques.

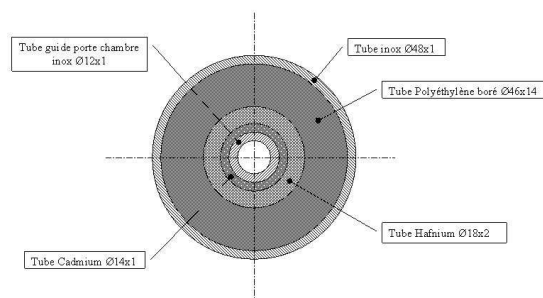


FIGURE 2.1.11: Vue en coupe du dispositif CELINA

Les chambres à fission étudiées dans le cadre de l'action CELINA sont :

- pour les chambres « rapides » :
 - du plutonium 240 pur,
 - du plutonium 240 avec impuretés contenant, en proportions massiques : 98,5% de plutonium 240, 1% de plutonium 239, 0,5% de plutonium 241,
 - du plutonium 242 pur,
 - du plutonium 242 avec impuretés contenant, en proportions massiques : 94,93% de plutonium 242, 0,21% d'américium 241, 0,43% de plutonium 241, 2,98% de plutonium 240, 0,99% de plutonium 239, 0,46% de plutonium 238,
 - du Neptunium 237 pur.
- pour les chambres « thermiques » :
 - du plutonium 239 pur,
 - du plutonium 241 pur,
 - de l'uranium 233 pur,
 - de l'uranium 235 pur.

Ces simulations ont permis de montrer l'efficacité de l'écran « thermique » pour les chambres « rapides ». En effet, grâce à cet écran, la contribution des neutrons thermiques est négligeable, ce qui permet d'étalonner des chambres dont les dépôts contiennent des impuretés sensibles aux neutrons thermiques. Néanmoins, afin de s'assurer contre toute perturbation lors des réalisations expérimentales, en plus de l'écran « thermique », une discrimination temporelle des fissions thermiques après le pulse du générateur de neutrons sera utilisée. Il a été aussi mis en évidence qu'il n'est pas possible de supprimer le signal induit par les fissions avec les neutrons du groupe énergétique n° 3 (1 keV à 1 MeV). Le signal obtenu sera donc significatif des

fissions provoquées par les neutrons d'énergie supérieure à 100 keV. Les réponses des chambres thermiques ont aussi été caractérisées dans cette étude. Toutefois, elles ne sont pas présentées dans ce mémoire, tout comme les réponses des chambres rapides afin de ne pas surcharger le document. Ces réponses, fournies par simulation, pour les chambres « rapides » et « thermiques », permettront aux utilisateurs de valider l'étalonnage de ces chambres à fission à l'aide d'un générateur de neutrons.

De plus, il a été vérifié que les « fuites neutroniques » de CELINA n'avaient que peu d'effet sur le taux de fission dans les chambres. Pour démontrer cela, le tube guide a été totalement « fermé » à chaque extrémité avec les épaisseurs des différents écrans, à savoir le cadmium et le diborure d'hafnium. Dans la réalité, CELINA est « ouvert » aux deux extrémités, ce qui pourrait créer des lignes de fuites neutroniques. Or, après vérification, ces fuites seront considérées comme négligeables.

Finalement, les réponses des chambres à fission permettent de conclure, pour les chambres rapides et en prenant comme référence les groupes énergétiques précédemment définis (en ne retenant que le groupe énergétique n° 4, le seul « utile » pour les fissions rapides), que :

- l'écran thermique est efficace sur les groupes énergétiques n° 1 et n° 2, puisqu'il permet d'annihiler la contribution thermique sur les impuretés,
- la contribution du groupe énergétique n° 3 n'est pas « coupée » par l'écran thermique. Cette contribution sera donc présente lors de l'étalonnage des chambres. De plus, pour l'élimination du groupe énergétique n° 3, une discrimination temporelle ne pourra pas être appliquée, car ce groupe énergétique est confondu avec le groupe énergétique n° 4. En effet, comme la réponse de ces neutrons « rapides » intervient en moins de $15 \mu s$ (pour les neutrons du groupe énergétique n° 3 et du groupe n° 4) et que l'impulsion du générateur est de $200 \mu s$, ce type de discrimination n'est pas réalisable expérimentalement.

Un mode de fonctionnement pulsé du générateur de neutrons est préconisé pour les chambres à fission « rapides ». En effet, pour les chambres « rapides », le mode de fonctionnement pulsé permet de couper la contribution du pic thermique après chaque impulsion du générateur de neutrons, en présence de l'écran thermique ; l'écran thermique permettant ainsi, lors des expériences, de se prémunir contre tout signal induit par les impuretés contenues dans le dépôt des chambres à fission. Le taux de comptage nominal est obtenu grâce à la répétition des impulsions, permettant ainsi d'obtenir une meilleure statistique de comptage qu'en mode continu. Pour les chambres « thermiques », le mode de fonctionnement continu ne permet pas d'obtenir de grandes durées de comptage puisque le signal devient négligeable en $50 \mu s$ après l'arrêt du générateur de neutrons. Cependant, en fonctionnant en mode pulsé, même pour les chambres « thermiques », il est possible de réaliser

l'acquisition des fissions « thermiques » pendant le pulse et même 2,5 ms après l'arrêt du générateur de neutrons.

L'ensemble des résultats obtenus a permis de garantir l'atteinte des objectifs et, par conséquent, d'envisager le lancement de la réalisation du dispositif CELINA dans la cellule PROMETHEE 6. Le dispositif est à présent fonctionnel et sert à l'étalonnage des chambres à fission miniatures.

2.1.3 Dispositif VVO

Avec ce dispositif, nous sortons du domaine de l'interrogation neutronique avec un générateur de neutrons pour aborder le domaine de la mesure neutronique passive par coïncidence avec détermination de la correction à apporter sur le coefficient d'étalonnage due à la composition physico-chimique de la matrice.

Dans certains cas, il peut être difficile de connaître la nature des déchets présents dans le fût (on parle de « matrice » du fût) que l'on cherche à caractériser. Il devient donc compliqué de relier un comptage à une masse équivalente de plutonium 240 (^{240}Pu) avec l'étalonnage établi pour une composition physico-chimique de référence, surtout lorsque la matrice du fût à caractériser diffère de cette matrice de référence. Il est à noter qu'il est toujours délicat d'estimer la matrice (qui est un mélange de matériaux) en présence dans un fût de déchets lorsque ce dernier est fermé. Ce point devient d'autant plus critique pour une exploitation de routine, où l'opérateur de mesure qui n'est pas forcément un homme de l'art, doit faire le choix de la correction de matrice à apporter à partir de son retour d'expérience personnel.

La méthode proposée ici permet de tirer une information non pas sur la nature de la matrice mais sur sa capacité à absorber les neutrons, ceci par le biais d'une mesure de transmission. Ceci permettra d'apporter la correction nécessaire au coefficient d'étalonnage. Le principe de mise en œuvre de cette méthode est décrit dans [7]. La présente étude porte sur la définition de la meilleure configuration de mise en œuvre de cette méthode sur un poste de comptage neutronique de fûts de déchets. Cette étude a été réalisée sur le poste de comptage neutronique VVO, présenté sur la figure 2.1.12.

Ce poste de mesure est constitué de deux demi-coquilles articulées afin de permettre la mise en place des fûts à caractériser

Il est destiné à la mesure des fûts de 100 et 200 litres. Il est composé de :

- une structure mécanique principalement constituée de polyéthylène présentant une cavité chemisée d'un ensemble aluminium - cadmium,



FIGURE 2.1.12: Poste de comptage neutronique VVO

- 32 détecteurs ^3He groupés 2 à 2 par l'intermédiaire de 16 boîtiers de jonction HN afin d'être connectés à 16 préamplificateurs,
- 1 analyseur neutron actuellement assurant l'acquisition du signal et l'alimentation haute tension,
- 1 module d'alimentation basse tension ± 12 Volts,
- 1 ordinateur autonome sur lequel est installé le logiciel d'acquisition.

La simple pesée d'un fût à caractériser permet d'accéder à la masse volumique apparente de la matrice. Cependant cette valeur ne constitue pas forcément le reflet de l'absorption neutronique. En effet, à densité égale, ces effets absorbants sont fonction de la nature de la matrice. Notamment, les matrices constituées d'éléments légers peuvent s'avérer plus pénalisantes pour le rendement de détection par rapport à des matrices constituées d'éléments lourds. Pour cette raison les mesures complémentaires proposées dans la suite de ce paragraphe consistent à caractériser les propriétés d'absorption et de thermalisation neutronique d'un colis.

Pour cela, une mesure neutronique par transmission à l'aide d'une source (dans notre cas, du californium 252) est utilisée comme indicateur du pouvoir thermalisant et absorbant du fût de déchets. Les mêmes mesures de transmission ayant été préalablement effectuées sur des colis étalons possédant des matrices vinyliques de différentes densités, permettent d'établir une loi $\rho_{\text{équivalent}} = f(\text{Trans})$, où « *Trans* » représente la transmission constatée. Ce principe est illustré par la figure 2.1.13.

$\rho_{\text{équivalent-vinyle}} = f(\text{Trans})$ est un indicateur permettant de déterminer la densité du colis étalon (constitué entièrement de matrice vinylique) possédant les mêmes caractéristiques d'absorption que le fût inconnu.

Le choix d'une source de californium 252 se justifie par le fait qu'il est préférable que les mesures de transmission sur colis étalons et colis réels soient effectuées avec une source possédant le même spectre énergétique d'émission et le plus proche

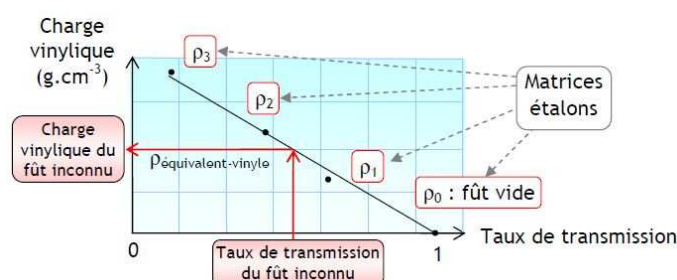


FIGURE 2.1.13: Schéma de principe de la correction de l'étalonnage en fonction de la matrice.

Etape 1 : détermination du taux de transmission du fût inconnu.

Etape 2 : détermination de la masse volumique équivalente vinyle du fût inconnu.

Etape 3 : détermination du coefficient d'étalonnage correspondant à la masse volumique équivalente vinyle déterminée grâce au taux de transmission du fût inconnu

possible de celui du contaminant à mesurer, ce qui est le cas entre le californium 252 et le plutonium 240.

Afin de tester plusieurs configurations lors de la validation expérimentale, le poste de mesure a été modélisé à partir du jeu de plans disponible et des cotes directement relevées sur l'appareil de mesure. Une fois la géométrie définie et validée, plusieurs courbes de correction représentant $\rho = f(Trans)$ ont été réalisées à l'aide du code de calcul de transport 3D de particules MCNP[6]. Ces simulations de courbes de correction ont été établies en gardant à l'esprit une mise en pratique aisée de la méthode. Trois configurations ont ainsi été étudiées :

- Position « VVO fermé H » : demi coquilles fermées, source placée sur le couvercle du fût, comptage effectué sur les 32 détecteurs du VVO. Cette configuration est illustrée sur la figure 2.1.14a. Les demi coquilles sont gardées ouvertes lors de la photographie afin de permettre une meilleure vision du système. Cette configuration est la plus simple à mettre en œuvre in situ car elle nécessite uniquement le centrage de la source de Californium sur le couvercle du fût,
- Position « VVO fermé » : demi coquilles collées, source placée sous le fût, comptage effectué sur les 32 détecteurs. La différence avec la configuration précédente est uniquement la position de la source de californium. Cette disposition, qui en théorie interroge principalement la partie inférieure du fût, permet de prendre en considération le phénomène de tassement de la matrice. La seule modification à apporter lors de la mesure in situ est de surélever le fût d'environ 2 cm pour positionner la source et sa protection en aluminium.

Cette configuration n'est pas représentée sur la figure 2.1.14 car elle n'est pas visible une fois le fût mis en place,

- Position « VVO ouvert » : source de californium collée sur une demi coquille en fond de butée (45 cm), comptage effectué sur les 16 détecteurs de la demi coquille opposée. Cette configuration interroge en théorie l'ensemble du fût et doit ainsi fournir la meilleure estimation de l'absorption de la matrice. Elle est représentée sur la figure 2.1.14b. C'est aussi la plus contraignante à réaliser car elle nécessite l'ouverture d'une demi coquille ainsi qu'un temps d'acquisition plus long, dû au comptage sur seulement la moitié des détecteurs.

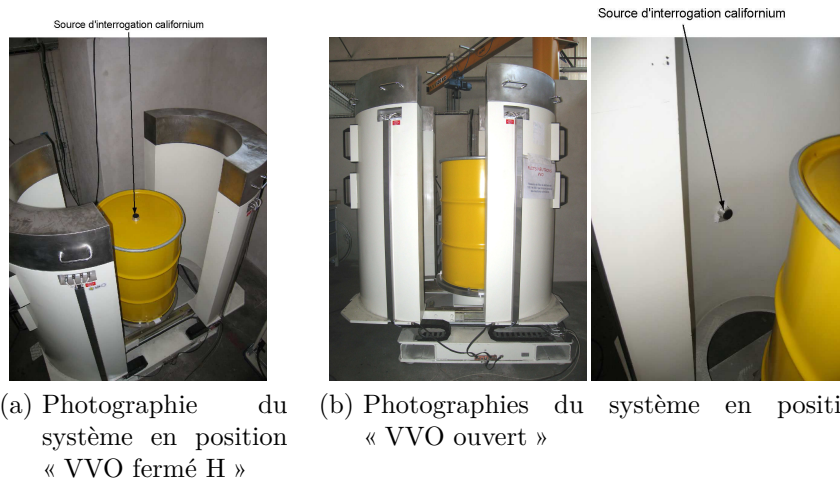


FIGURE 2.1.14: Photographies des configurations de transmission étudiées

Trois courbes de corrections (une par position de source) et 10 densités différentes de matrices vinyliques (variation de 0,1 à 1 par pas de 0,1) par courbe de correction ont ainsi été générées par des calculs de simulation. Ces trois courbes obtenues sont représentées sur la figure 2.1.15.

On constate au premier abord que les courbes possèdent la même allure générale mais sont assez dispersées. Les différences entre les courbes viennent du fait que l'interrogation du fût n'est pas effectuée de la même façon pour les 3 méthodes.

Afin de vérifier la pertinence des lois établies grâce aux simulations MCNP, des mesures expérimentales de transmission sur fûts sont réalisées sur le VVO. La première série de fûts testés est constituée par les matrices étalons utilisées par le

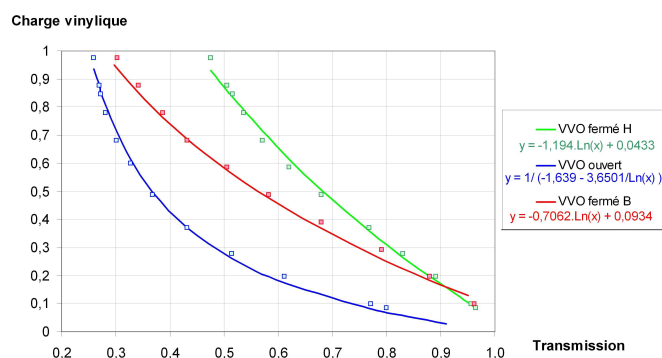


FIGURE 2.1.15: Courbes de correction obtenues par simulations MCNP pour différentes configurations expérimentales

laboratoire de différentes masses volumiques apparentes (0,122, 0,277, 0,369, 0,845 g/cm^3). Le test final consistera à appliquer la méthode de correction à une matrice composite, avec une répartition non homogène, représentative des fûts réels.

Les points expérimentaux obtenus sont présentés sur la figure 2.1.16. Les courbes de correction obtenues par modélisation sont aussi présentées afin de vérifier la concordance entre modélisation et expérimentations.

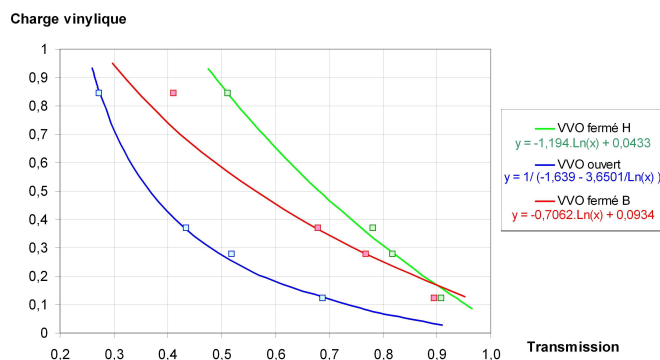


FIGURE 2.1.16: Les carrés représentent les taux de transmission relevés expérimentalement sur les 4 matrices étalons en PVC du laboratoire. Les 3 séries de 4 points correspondent aux 3 configurations testées appliquées à ces 4 matrices. Les 3 courbes sont celles issues des modélisations MCNP

Sur les 4 matrices étalons, la configuration « VVO ouvert » fournit la meilleure validation expérimentale de la modélisation avec des écarts variant de -8,6 à 1,4%. La position « VVO fermé H » aboutit à des écarts du même ordre sauf pour la matrice test n°1, qui possède la plus faible densité. Ceci peut être expliqué par des erreurs de modélisation, en particulier au niveau du dimensionnement des différents composants dans la partie haute du VVO. En effet, les modélisations sont basées sur les plans fournis par le constructeur couplés à des cotes relevées sur le terrain, et certaines de ces côtes ne correspondent pas toujours à celles mentionnées sur les plans. Pour coller le plus possible à la réalité, on préfère se servir des cotes relevées in situ mais certaines dimensions qui influent directement sur la mesure (profondeur des puits recevant les compteurs 3He) ne sont pas mesurables sur le terrain. On se base alors, dans ce cas, sur les plans. La configuration « VVO fermé B » est celle qui présente les écarts les plus importants, variant de -14,4 à 30,1%. Comme dans le cas précédent, ces écarts peuvent être dûs à des erreurs de modélisation. Dans cette configuration, la source de californium est positionnée directement sur les armatures du VVO. Or ces armatures ne sont pas mesurables in situ sur le système de mesure et on est donc contraint d'utiliser les cotes renseignées sur les plans. De plus, dans cette configuration les modélisations sont beaucoup plus sensibles à des erreurs de cotation du fait que la source est positionnée au même niveau que les pieds des détecteurs. La moindre variation de position de la source modifie significativement l'angle solide de détection, ce qui peut induire des écarts importants entre modélisation (où la position de la source est fixe) et expérience (où la position est à mesurer précisément et à reproduire systématiquement entre chaque mesure). A titre indicatif une variation de 2 cm sur la position de la source impacte de 3% le rendement de détection modélisé.

Après avoir vérifié le fonctionnement de la méthode avec des fûts étalons composés de PVC, un fût semblable à ceux expertisés par le laboratoire est traité. La matrice de ce fût se compose d'une couche métallique (au fond), d'une couche mixte organique et métallique (au milieu) et d'une couche organique (sous le couvercle). Un schéma de cette configuration est montré sur la figure 2.1.17.

Une source de 400 mg de Pu est positionnée à différents endroits (milieu et bas du fût dans le canal central) et les méthodes sans correction matricielle et avec correction matricielle sont mises en œuvre.

Le mode opératoire pour la méthode est le suivant : on détermine la masse de plutonium présent dans le fût avec et sans méthode de correction matricielle et on évalue ensuite les écarts par rapport à la masse de 400 mg initialement introduite.

Sans correction matricielle, la masse de plutonium est évaluée à 441,3 mg, soit un écart de +10,3%, par rapport à la valeur de référence. Avec correction matricielle, en appliquant la méthode par transmission avec les trois configurations

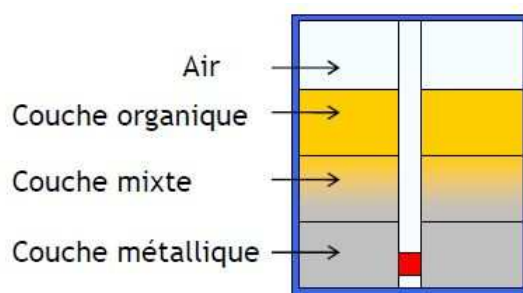


FIGURE 2.1.17: Schéma du fût étudié avec la source de plutonium en bas du canal d'insertion

de transmission décrites précédemment et en plaçant la source de plutonium à différents endroits du fût, on constate que la masse de Pu passe de 441,3 mg sans correction à des valeurs variant de 382,1 mg à 409,7 mg avec correction (pour une valeur de référence de 400 mg). Les valeurs obtenues après correction permettent d'estimer la masse réelle de Pu avec moins de 5% d'erreur, c'est-à-dire 2 fois moins que sans correction, mais surtout sans connaissance a priori de la matrice du fût à caractériser. La configuration « VVO fermé H » est finalement retenue du fait de sa simplicité de mise en œuvre et de ses performances.

La mise en place d'une méthode de transmission neutronique s'avère un moyen technologique pérenne et simple à mettre en œuvre pour quantifier la capacité d'absorption d'un fût de déchets, et ainsi estimer plus précisément la masse de plutonium présent dans ce fût. Elle est actuellement utilisée, de façon automatisée, pour l'évaluation de l'activité plutonium des fûts sortant du centre de Valduc et allant soit vers l'exutoire de l'Agence Nationale de gestion des Déchets Radioactifs (ANDRA) soit vers l'installation d'entreposage des déchets radioactifs (CEDRA) du centre CEA de Cadarache. L'application de cette méthodologie de correction de matrice permet la prise en compte des effets de matrice et ainsi de maîtriser et de réduire les incertitudes liées à ces effets. Le principe de l'exploitation de la mesure, afin de déterminer l'activité finale du fût, est décrit dans la figure 2.1.18. Pour alimenter la validation de cette méthode, le laboratoire a compilé dans un document de synthèse [21] les performances de la méthode, pour différentes matrices et configurations de terme source.

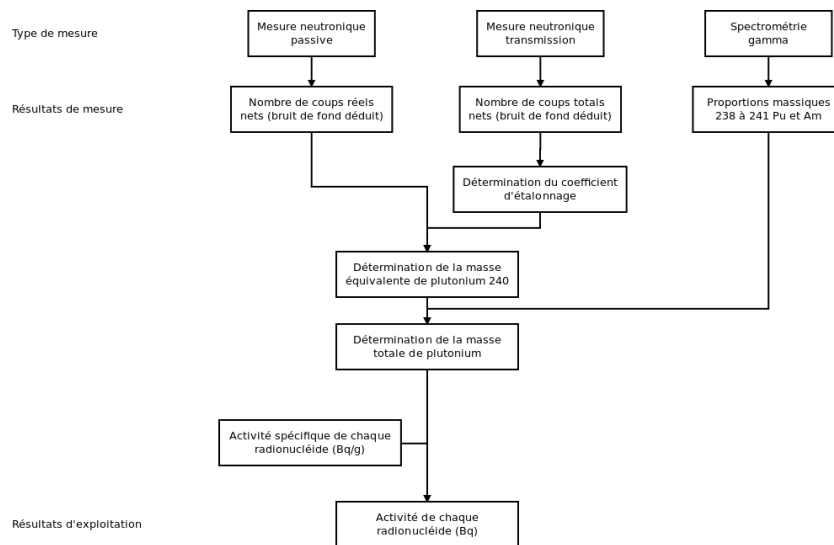


FIGURE 2.1.18: Principe d'exploitation du comptage neutronique sur l'appareil VVO

2.2 Conception de poste de mesure neutronique passive par coïncidence

L'étude présentée relève de l'ingénierie et non du développement. Toutefois, c'est au travers de cette étude que j'ai maîtrisé le dimensionnement et l'intégration à un procédé de poste de mesures neutroniques passives par coïncidences. Pour aboutir à une solution optimum, il faut avoir une bonne connaissance des codes de calcul de transport de particules, des méthodes et du procédé. C'est avant tout une question de savoir faire. La salle de casse du centre d'étude nucléaire de Valduc est destinée essentiellement au démantèlement et à l'évacuation des boîtes à gants (BàG) sous forme de déchets d'équipements de procédé. Après démontage et découpe, ces déchets sont disposés dans des paniers « navettes ». Après mesure, les paniers sont vidés dans un caisson de 5 m^3 (18 à 22 paniers par caisson). La mesure est destinée à la quantification de l'activité α contenue dans ces paniers, de sorte à garantir leur acceptabilité pour un stockage de surface. Afin d'augmenter la productivité de l'atelier pour répondre à un besoin de démantèlement de boîte à gants plus important, il a été décidé de remplacer le poste actuel par un nouveau poste de mesure avec des performances doublées. L'objectif du poste [26] est de caractériser par mesure neutronique passive par coïncidence des paniers (de dimensions 50 x 50 x 50 cm) remplis de déchets technologiques.

Pour cela, il est nécessaire de concevoir le dispositif :

- garantissant une limite de détection de 3 mg de plutonium 240 équivalent

($^{240}\text{Pu}_{\text{éq}}$) pour une durée de mesure de 30 minutes (respectivement 15 minutes) dans le cas du dosage d'un panier organique (respectivement dans le cas d'un panier métallique),

- répondant aux normes de sûreté et de sécurité en vigueur pour le travail en boîte à gants,
- permettant une maintenance aisée des matériels présents à l'intérieur de la boîte à gants,
- de réalisation mécanique simple.

Pour répondre à ces objectifs, la conception la plus simple est de disposer le système de mesure, amovible, à l'extérieur de la boîte à gants. A l'intérieur de celle-ci, il ne restera plus que le dispositif de manutention des paniers. Cette disposition permet ainsi de minimiser les contraintes liées aux normes de sûreté et de sécurité des boîtes à gants et elle permet aussi de faciliter l'accès à l'intérieur de la boîte à gants. La boîte à gants sera alors réduite à la cavité de mesure. Ceci aura pour conséquence directe l'éloignement des détecteurs neutroniques du panier impliquant une baisse du rendement de détection du poste de mesure. Cette baisse se traduit par une augmentation de la limite de détection. La figure 2.2.1 présente la boîte à gants mesure réalisée suite à cette étude.

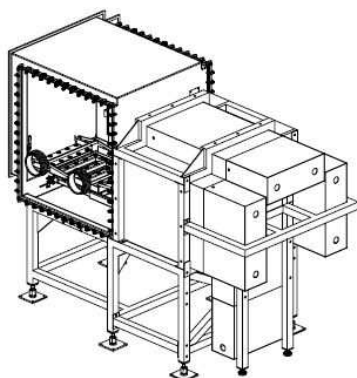


FIGURE 2.2.1: Future boîte à gants mesure de la salle de casse de Valduc

Il en ressort que le meilleur compromis est un poste de mesure constitué de 48 détecteurs ^3He (poste de mesure à 4 blocs détecteurs plus un poste de spectrométrie gamma) dont les blocs détecteurs seront dépourvus de cadmium en face avant. Les résultats de l'étude ont débouché sur un poste de mesure où :

- une variation de 8% sur le temps de vie est observée entre matrice organique et matrice métallique, lorsque les blocs détecteurs sont entièrement entourés de cadmium. Toujours dans cette configuration, il n'y a presque pas de variation du temps de vie (1% maximum) entre matrice vinyle et matrice plexiglas,

- pour la configuration où les blocs détecteurs n'ont pas de cadmium en face avant, une variation de 12% est aussi observée entre matrice vinyle et matrice plexiglas.

Afin de prendre en compte l'influence de l'environnement sur les performances du dispositif de mesure, il a été étudié :

- l'impact sur le rendement de détection de l'ajout de hublots de maintenance sur les parois de la boîte à gants cavité de mesure,
- l'influence de la présence de matière dans l'environnement immédiat du dispositif de mesure,
- la présence d'un éventuel stockage de paniers pleins dans la boîte à gants de transit qui perturbera la mesure. Cependant, avec la mise en place d'une protection adéquate, cet impact peut être minimisé.

Des trois points abordés dans cette note, il en ressort que :

- l'ajout de hublots en LEXAN de 1 cm d'épaisseur et de 20 cm de diamètre ne perturbera que peu les performances du dispositif de mesure,
- l'environnement immédiat du dispositif de mesure a un impact certain sur les performances du dispositif. Il en ressort que des protections sont nécessaires pour conserver les performances initiales du dispositif de mesure. Sans protections, l'influence sur le comptage :
 - du caisson de démantèlement est de 6,4% en comptage total et de 15,7% en comptage des coïncidences (pour une masse de 5 g de plutonium total en rétention),
 - d'un stockage de paniers dans la boîte à gants de transit serait de 14,1% en comptage total et de 25,1% en comptage des coïncidences.

Tous les résultats concernant l'estimation de l'impact de l'environnement ne peuvent tenir compte des comptages parasites dus à des dépôts éventuels surnuméraires de matière dans les différents sites modélisés (caisson de démantèlement et boîte à gants de transit) et qui contribuent aux comptages de bruit de fond.

2.3 Métrologie des comptages neutronique par coïncidence

2.3.1 MCMF

Comme pour le dimensionnement du nouveau poste de mesure neutronique de la salle de casse, l'étude présentée dans ce paragraphe est une étude d'ingénierie. Par contre, cette étude contient une part de développement car elle a exploré l'application de la méthode présentée au cas de matières plutonifères sous forme de carbure, nitrure, de boulet combustible HTR (High Temperature Reactor). La

méthode étudiée dans ce paragraphe est décrite dans [8, 22]. Le Magasin Central des Matières Fissiles (MCMF) du CEA Cadarache a besoin pour son bilan matière de pouvoir caractériser les matériaux présents dans les références entreposées dans le magasin afin de garantir, de façon contradictoire, les quantités déclarées par les producteurs et entreposées. Pour cela, ce magasin dispose d'un poste de mesures non destructives comprenant un système de comptage neutronique passif par coïncidences et un système de spectrométrie gamma. Le premier permet la détermination de la masse de plutonium 240 équivalent et le second l'évaluation de la composition isotopique du plutonium. La combinaison des deux résultats de mesure permet de remonter à la masse de plutonium total de l'objet caractérisé. Les références entreposées contiennent plusieurs kilogrammes de matière plutonifères ou uranifères de fortes densités (poudres ou frittés). Cette configuration a pour conséquences la production de fissions induites (effet de multiplication) et de réactions (α, n) , variant en fonction des quantités de matières présentes dans les références, de la nature isotopique (taux d'enrichissement différents) et de l'âge (la décroissance du plutonium 241 formant de l'américium 241, source de réaction (α, n)). Dans le cadre des engagements globaux pris auprès du HFD (Haut Fonctionnaire à la Défense), le Bureau Mesure (BM) du Département de Gestion des Installations (DGI) souhaite disposer, pour le MCMF, d'une nouvelle méthode d'interprétation permettant de réduire les incertitudes sur les mesures de plutonium 240 équivalent. L'étude réalisée a permis :

- d'évaluer l'influence des différents paramètres sur les incertitudes de mesure, dans le but de réduire ces dernières,
- d'établir qu'une méthode d'interprétation proche de celle employée par les inspecteurs de l'Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire (IRSN) est applicable à une partie des articles du MCMF et aboutit bien à une réduction de l'incertitude sur la masse de plutonium 240 équivalent,
- de définir une méthode générale permettant de caractériser tous les assemblages du MCMF, notamment les objets « exotiques » pour lesquels peu d'informations sont disponibles.

La mesure peut être, en sus du taux d'humidité, influencée par la présence d'éléments chimiques « perturbateurs » non répertoriés dans l'inventaire du MCMF. Ceux ayant la plus grande influence sur la mesure, et qui ne sont pas pris en compte dans cette étude, sont :

- la présence de thermalisants neutroniques, tels que les vinyles autres que ceux protégeant les pots primaires ou la matière (pris en compte dans cette étude),
- les poisons neutroniques tels que le bore, le cadmium. . . ,
- l'absence et/ou la mauvaise information sur la nature chimique de la matrice présente dans l'assemblage interne.

L'interprétation des mesures se fera alors au cas par cas et nécessitera une expertise en dehors du champ d'application des méthodes mentionnées dans cette étude.

Le bilan de cette étude est que :

- la méthode à deux paramètres, décrite dans [8, 22], pour les oxydes de plutonium et le MOX est applicable au MCMF,
- cette même méthode à deux paramètres pourrait être appliquée aux carbures présents au MCMF mais nécessitera la réalisation de la droite d'étalonnage et de l'incertitude associée spécifique aux carbures sur le rendement de détection et le facteur de multiplication,
- à partir du rendement de détection et de la durée de vie des neutrons dans l'enceinte de mesures caractéristiques des colis à caractériser, la correction analytique des effets de multiplication ou des effets (α, n) (si l'effet de multiplication est connu) est performante. Avec les cartes de datation la donnée durée de vie des neutrons est accessible pour chaque colis à caractériser.

Dans le cas d'oxyde de plutonium, de MOX ou de plutonium métal, l'estimation de l'incertitude relative finale sur la masse de plutonium 240 équivalent avec la méthode à deux paramètres définie par cette étude est de 8 % maximum (à 1σ) alors qu'avec la méthode précédemment appliquée au MCMF cette même incertitude était de 16 % (à 1σ). De plus, cette étude démontre que pour les objets mal caractérisés ou dont les informations disponibles ne sont pas complètes (objets historiques issus d'action de R&D ou rebuts), il est difficile d'atteindre une incertitude relative finale sur la masse de plutonium 240 de 3 % (à 1σ).

Le résultat de cette étude a été appliqué avec succès à une référence du magasin qui était en litige. Suite à la reprise par le producteur, celui, par pesée et analyse chimique a confirmé la valeur fournie par la méthode de l'étude avec un écart, entre les deux résultats d'analyse, de 2%. La méthode établie dans cette étude a été appliquée pour les comptages des références du MCMF.

2.3.2 Poste de mesure neutronique passive du LEFCA

Là encore, il s'agit d'une étude d'ingénierie qui a permis de développer et d'appliquer les méthodes de détermination du modèle explicatif de la réponse (quantification et estimation de l'incertitude) par méthode Monte-Carlo. Le LEFCA est le Laboratoire d'Etude et de Fabrication expérimentales de Combustible nucléaire du CEA Cadarache. Le LEFCA est un laboratoire en charge de la réalisation d'études de base sur le plutonium, l'uranium, les actinides et leurs composés sous toutes leurs formes (alliages, céramiques ou composites) en vue d'une application aux réacteurs nucléaires, de la réalisation d'études hors pile nécessaires à l'interprétation et à la compréhension du comportement des combustibles en réacteur et dans les différentes étapes du cycle, et de la fabrication de capsules ou d'assemblage expérimentaux destinés aux essais d'irradiation. Pour l'évaluation de l'activité plu-

tonium présente dans les fûts de déchets produits par ses activités d'études sur le plutonium, le LEFCA a décidé de se doter d'un dispositif de mesure neutronique passive par coïncidence. La présente étude a permis de moderniser la cellule actuelle de comptage neutron du LEFCA, qui était hors service, de la mettre en service et de valider son fonctionnement afin que ce moyen de mesure soit approuvé par l'IRSN pour l'inventaire des matières fissiles et par l'exploitant en charge de la collecte et de l'expédition des déchets vers les sites de l'ANDRA. Ce dispositif est présenté sur la figure 2.3.1.

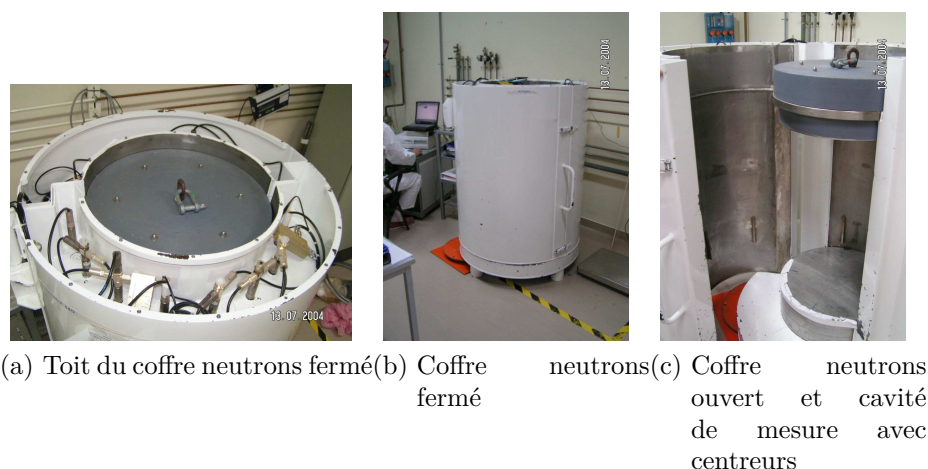


FIGURE 2.3.1: Vues du coffre neutrons du LEFCA

Cette étude [30, 19] a été pour moi le prélude au déploiement d'une démarche métrologique rigoureuse permettant d'apporter toutes les preuves concernant la garantie des résultats rendus et des incertitudes associées. Elle est basée sur les normes françaises [3, 2]. Elle a été à l'origine de la réflexion et de l'amélioration de la prise en compte puis de la réduction de l'incertitude liée à la nature de la matrice (méthode de correction de matrice) pour le dispositif de mesure des fûts de déchets issus du LEFCA.

Le coffre de mesure existant est principalement constitué d'une cavité destinée à recevoir les fûts de 100 litres à caractériser. Cette cavité possède des centreurs afin de placer correctement le fût au centre de la cavité, et d'obtenir ainsi la réponse radiale la plus homogène possible. Cette cavité est entourée d'une épaisseur de paraffine enchâssée dans une paroi cylindrique en acier inoxydable. Des cavités permettent de positionner les détecteurs hélium 3 dans l'épaisseur de paraffine.

Nous ne disposerons pas de plus d'informations sur ce coffre de mesure, car nous ne disposons d'aucun plan.

Afin d'améliorer les caractéristiques techniques du dispositif de mesure présenté ci-dessus, les innovations suivantes ont été introduites :

1. augmentation du nombre de détecteurs hélium 3, avec un passage de 12 compteurs à 16 compteurs. Ceci permet d'augmenter le rendement de détection du coffre de mesure,
2. remplacement standard des tiroirs ADSF (amplificateurs de courant) par des amplificateurs de charges de type ACH NP97. De tels amplificateurs de charge permettent un gain de comptage d'environ 30 %,
3. remplacement du couple SCRD ISCN2 par le module JSR14, pour le traitement des coïncidences.

La mise à niveau du coffre neutrons de la cellule n°6 du LEFCA a été réalisée et qualifiée. La conséquence directe d'une telle mise à jour est :

- l'augmentation du rendement de détection d'un facteur 1,7, portant ce rendement de détection à 7,8%,
- l'obtention d'une limite de détection de 28,3 mg de $^{240}\text{Pu}_{eq}$ (pour 600s de temps de comptage), en présence de neutrons corrélés de bruit de fond dans l'environnement.

Une fois cette mise à niveau du coffre neutrons réalisée, la droite d'étalonnage a été établie afin de donner la correspondance entre le taux de comptage et la masse de plutonium 240 équivalent présente dans le fût à quantifier. Une étude approfondie des incertitudes-types a permis d'encadrer le résultat final de la mesure. Ces incertitudes-types sont :

- l'incertitude statistique sur le comptage,
- l'incertitude sur les matériaux de référence,
- l'incertitude sur la droite d'étalonnage,
- l'incertitude sur la position du contaminant dans le fût à quantifier.

L'étude statistique sur le comptage a permis de tester la répétabilité et la reproductibilité de la mesure. L'incertitude-type de position s'est révélée être l'incertitude ayant l'impact le plus significatif sur l'incertitude finale. Cette incertitude-type traduit la méconnaissance a priori de la position potentielle de la contamination présente dans le fût à caractériser.

Cette incertitude-type est évaluée à : $\sigma_{posrel} = 28\%$.

Cette incertitude a été évaluée à partir des signaux minimum et maximum relevés, c'est à dire que l'on a déterminé quelles étaient les réponses minimales et maximales obtenues dans un fût de 100 litres avec une source ponctuelle placée à différents endroits dans le fût. Ces réponses sont évaluées par rapport à la configuration de référence qui est une répartition homogène de la contamination dans le fût. Le modèle de comportement appliqué est une loi de probabilité équiprobable.

Une telle approche présente l'avantage de la simplicité. En revanche, elle peut se révéler relativement majorante à cause de l'écart entre la distribution équiprobable et la distribution réelle qui présente généralement un maximum décalé par rapport à la moyenne et est donc asymétrique.

Cette même incertitude peut être estimée par méthode Monte-Carlo. La distribution des masses en fonction de la position, dans l'ensemble du volume utile du fût, est obtenue par méthode de Monte Carlo. Pour cela, les 12 valeurs de comptage relevées dans le fût sont réparties de façon homogène dans tout le volume utile du fût par interpolation linéaire. Ensuite, en tirant aléatoirement suivant le rayon et la hauteur du volume utile du fût pour simuler une répartition équiprobable, nous générons l'ensemble des masses pouvant conduire à un signal donné. Cette distribution, de 10 000 tirages, permet d'évaluer, avec les intervalles de confiance souhaités, l'incertitude-type de position. Après 10000 tirages aléatoires des résultats de mesures avec leurs incertitudes associées, les résultats obtenus pour l'incertitude-type de position sont présentés sur la figure 2.3.2.

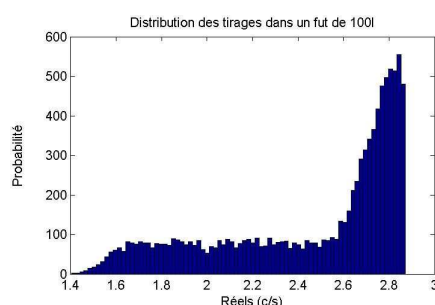


FIGURE 2.3.2: Estimation de l'incertitude type de position par méthode Monte-Carlo

La figure 2.3.2 montre clairement une loi de probabilité asymétrique et ne correspondant pas aux lois habituelles (loi normale, équiprobable, triangle,...). Clairement, ici l'espérance mathématique n'est pas centrée et l'expression d'une incertitude-type de position symétrique est erronée. Cette dissymétrie entre les comptages est due au fait que les détecteurs 3He reposent sur un socle qui est au même niveau que le fond du colis de référence, et donc des fûts à quantifier. Ceci engendre une perte de comptage car le fond du colis de référence n'est pas dans la zone « plate » de réponse du détecteur (effet d'angle solide).

Enfin, nous avons montré que l'incertitude-type composée sur une masse de plutonium 240 équivalent serait très nettement améliorée si la réponse du coffre neutron était « plate » sur toute la longueur utile des détecteurs 3He (c'est à dire

sans différence de comptage entre le fond et le haut du fût, à l'incertitude statistique de comptage près). En effet, avec ce coffre neutrons, l'incertitude finale associée à la masse de plutonium 240 équivalent est principalement due à l'incertitude sur la position du contaminant dans le fût à quantifier. Avec une détermination par méthode Monte-Carlo de l'incertitude-type composée, en présence de ce coffre, l'incertitude-type composée finale sur une masse de plutonium 240 équivalent est 1,5 fois plus importante que celle obtenue avec un coffre « idéal » (réponse symétrique, Cf figure 2.3.2).

La méthode de Monte-Carlo permet aussi de déterminer directement l'incertitude finale. L'incertitude-type sur la position de la masse de $^{240}\text{Pu}_{eq}$ dans le fût n'est pas calculée individuellement. En effet, l'incertitude finale sur une masse de $^{240}\text{Pu}_{eq}$ est donnée sous la forme de deux droites $(m^{240}\text{Pu}_{eq})_{min}$ et $(m^{240}\text{Pu}_{eq})_{max}$. Nous avons ainsi deux résultats représentant les valeurs maximum et minimum sur une masse de $^{240}\text{Pu}_{eq}$. Ces résultats prennent en compte toutes les composantes d'incertitudes dont celle sur la position. L'incertitude finale associée à la masse de $^{240}\text{Pu}_{eq}$ est donnée directement à 1σ , correspondant en fait aux bornes encadrant la valeur mesurée. Cette incertitude évolue en fonction de la masse à quantifier. Les résultats sont présentés sur la figure 2.3.3 sous forme de trois droites :

1. la droite d'étalonnage, donnant la correspondance entre le taux de comptage et la masse quantifiée. Elle a pour équation : $m^{240}\text{Pu}_{eq} = 0,668 \cdot R + 0,048$,
2. la droite extrême correspondant à la borne inférieure de l'incertitude. Cette droite a pour équation : $(m^{240}\text{Pu}_{eq})_{min} = 0,539 \cdot R - 0,126$,
3. la droite extrême correspondant à la borne supérieure de l'incertitude. Cette droite a pour équation : $(m^{240}\text{Pu}_{eq})_{max} = 0,860 \cdot R + 0,090$.

où :

- $m^{240}\text{Pu}_{eq}$ représente la masse de $^{240}\text{Pu}_{eq}$ en grammes,
- R représente le taux de comptage ($c \cdot s^{-1}$) des coïncidences réelles ,
- $(m^{240}\text{Pu}_{eq})_{min}$ représente la borne inférieure de l'incertitude. Elle est exprimée en grammes de $^{240}\text{Pu}_{eq}$,
- $(m^{240}\text{Pu}_{eq})_{max}$ représente la borne supérieure de l'incertitude. Elle est exprimée en grammes de $^{240}\text{Pu}_{eq}$.

Il est à noter que les pentes des droites sont exprimées en g de $^{240}\text{Pu}_{eq} \cdot c^{-1} \cdot s^{-1}$ et les ordonnées à l'origine sont exprimées en g de $^{240}\text{Pu}_{eq}$.

Une seconde étude a été menée afin d'optimiser le poste de mesure et de réduire les incertitudes associées, surtout celle associée à la position du contaminant. Lors de cette étude le fond du coffre a été ouvert. Il est apparu sous le couvercle de protection en inox :

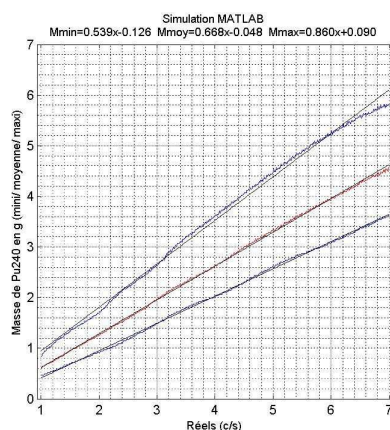


FIGURE 2.3.3: Résultat final par méthode Monte-Carlo. Les 3 droites représentées sont respectivement, en partant du bas, la droite extrême correspondant à la borne inférieure de l'incertitude, la droite d'étalonnage, donnant la correspondance entre le taux de comptage et la masse quantifiée, la droite extrême correspondant à la borne supérieure de l'incertitude

- une plaque de cadmium
- un réservoir en inox rempli de paraffine.

Cette plaque de cadmium (environ 1 mm d'épaisseur) et cette épaisseur de paraffine (environ 10 cm d'épaisseur) ont pour effet de couper tout neutron provenant du fond du fût à caractériser. La solution consiste à retirer la plaque de cadmium et la paraffine. Le résultat de cette opération est représenté sur la figure 2.3.4.

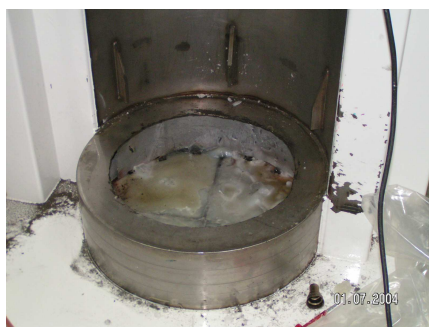


FIGURE 2.3.4: Coffre neutrons après modifications. Les modifications sont le retrait de la paraffine et du cadmium qui étaient présents à l'intérieur du socle ci-dessus

Le couvercle de protection, en acier inox, est à nouveau fixé au-dessus de la cavité (en fond de cellule) afin de rendre au coffre son intégrité. Le reste du coffre neutrons ainsi que tout le paramétrage de l'électronique restent inchangés. Le traitement des données est toujours assuré par le même logiciel dédié.

Tous les paramètres du dispositif de mesure ont été réévalués. Seuls les principaux résultats de cette évaluation sont repris ici.

A partir des comptages obtenus avec le fût vide nous avons déterminé l'incertitude type relative de position sur la base d'une distribution équiprobable de la source dans le fût [3]. Cette incertitude vaut maintenant : $\sigma_{posrel} = 11,7\%$.

Cette nouvelle incertitude (de 11,67 %) est à comparer avec celle obtenue précédemment de 28%. Le fait de modifier le coffre neutrons en retirant la plaque de cadmium et la paraffine a donc permis de réduire d'un facteur 2 l'incertitude sur la position.

Par méthode Monte-Carlo, la distribution obtenue, après 100 000 tirages aléatoires des résultats de mesures avec leurs incertitudes associées et qui permet d'évaluer directement l'incertitude type associée à la position à un niveau de confiance de 68 % (soit 1σ), est présentée sur la figure 2.3.5. Les valeurs S_{min} et S_{max} (à 95 %) sont représentées en pointillés noirs sur la figure.

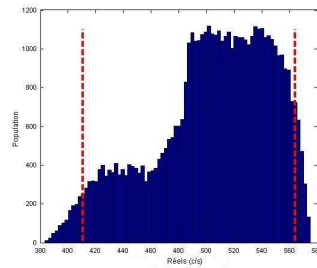


FIGURE 2.3.5: Estimation de l'incertitude type de position par méthode Monte-Carlo. Cette incertitude type est évaluée à partir de la distribution de probabilité ci-dessus. L'incertitude type est égale à 95% de cette distribution. Les bornes à 2,5% inférieures et supérieures sont représentées par les pointillés rouges

L'incertitude relative de position, évaluée par méthode Monte-Carlo (et non plus à partir d'une loi équiprobable) est estimée à : $\sigma_{posrel} = 10,4\%$. Cette incertitude relative est estimée en utilisant comme signal de référence une répartition homogène de la contamination dans la matrice du fût. La forme de la distribution obtenue, même si elle ne correspond toujours pas aux lois habituelles, a une asymétrie beaucoup moins prononcée que lors de la première étude.

Le Facteur correctif de Répartition Homogène (FRH), défini comme le rapport de la réponse à une source homogène sur la réponse à la source ponctuelle dans la position de référence, est évalué à partir des résultats de mesure obtenus en différentes positions. Le FRH obtenu, pour un fût vide, vaut : $FRH = 0,972$. Cette valeur, proche de 1, démontre que le dispositif de mesure possède maintenant une faible variation de réponse en fonction de la position de la source dans le fût. Autrement dit, il n'y a que peu d'écart entre l'étalonnage ponctuel réalisé, source centrée dans le fût, et l'étalonnage de référence qui est une répartition homogène de la contamination dans le fût.

Les modifications du coffre neutrons du LEFCA ont été réalisées et qualifiées. Le nouveau rendement de détection du coffre est de 6,77 %. La limite de détection est maintenant de 18,8 mg de $^{240}\text{Pu}_{eq}$ (pour 600 s de temps de comptage). Les nouvelles caractéristiques du coffre neutrons sont :

- la nouvelle droite d'étalonnage qui a pour valeur : $R = 1,8373 \cdot m^{240}\text{Pu}_{eq}$,
- l'incertitude relative (à 1σ) sur la pente de la droite d'étalonnage est $\sigma_{b\text{rel}} = 4,1\%$,
- l'incertitude relative (à 1σ) sur la position dont la valeur est $\sigma_{pos\text{rel}} = 10,4\%$.

Par rapport à la première étude, ces nouvelles caractéristiques permettent de réduire l'incertitude sur la masse de plutonium 240 équivalent (valeur finale) d'un facteur 2 et surtout d'augmenter la précision sur les masses caractérisées. L'apport de cette étude a été l'estimation de la réponse du poste de mesure et de son incertitude finale par méthode Monte-Carlo ainsi que l'évaluation de la réponse du poste de mesure en fonction de la position d'une source ponctuelle dans le fût par rapport à une répartition de référence homogène. Ce poste de mesure tel que défini dans cette étude est actuellement en fonctionnement, qualifié par l'IRSN et par l'exploitant gérant les déchets sur le site de Cadarache.

2.4 Métrologie de la spectrométrie gamma

2.4.1 Caractérisation de diodes germanium

Les mesures par spectrométrie gamma sont effectuées avec des diodes en germanium hyper pur (GeHP). Pour remonter à la quantité de matière présente dans l'objet mesuré, il est nécessaire de connaître l'efficacité de détection de la diode. Cependant cette efficacité de détection est spécifique aux géométries de chaque scène de mesure. Si pour des configurations simples, elle peut être déterminée par mesure directe sur source étalon, cela n'est pas réalisable pour les géométries complexes auxquelles sont régulièrement confrontées les équipes de mesure, notamment lors de mesures de rétention en boîte à gants. Dans ces configurations, il est primordial de garantir la maîtrise de la réponse du détecteur, de la modélisation de

la scène de mesure et du calcul de transport des particules (notion d'efficacité de détection) afin de :

- rendre le résultat d'essais le plus juste possible, c'est-à-dire le plus proche possible de la valeur recherchée,
- estimer l'incertitude associée encadrant de façon cohérente la valeur recherchée (reproductibilité).

L'enjeu de cette étude est lié au constat suivant sur les réponses spatiales des détecteurs : lorsqu'elles sont vendues par un équipementier (CANBERRA, ORTEC, ITECH, A&M,...) elles sont obligatoirement associées au logiciel de transport de particules vendu par l'équipementier. Les méthodes permettant l'obtention de ces réponses spatiales par l'équipementier sont plus ou moins bien décrites et validées (seulement quelques points de mesures expérimentales de recalage pas en adéquation avec nos problématiques, passage d'une géométrie de terme source ponctuelle à volumique uniquement analytique,...). Les incertitudes associées à la retranscription des écarts entre mesures expérimentales et modélisations sont traités de façon génériques et discrètes. Notre but est d'adosser les caractérisations de nos capteurs à un code de transport Monte-Carlo robuste et validé permettant de modéliser toutes les configurations (surtout les plus complexes) que nous rencontrons sur le terrain et surtout les intégrer à part entière dans le processus de mesure.

L'étude ci-dessous a été réalisée, premièrement dans le cadre d'un postdoctorat [14] puis d'un diplôme de Recherche Technologique [13].

Lorsqu'un rayon gamma interagit dans la zone intrinsèque, un électron primaire est produit par effet photoélectrique, diffusion compton ou éventuellement par production de paire. Ces électrons qualifiés de primaires possèdent une énergie de plusieurs ordres de grandeur supérieure au gap du semi-conducteur. Ils créent ainsi des paires électrons-trou. Ainsi, à chaque création d'électrons primaires, une cascade de paires électron-trou est générée. La différence de potentiel appliquée au cristal de germanium produit un déplacement de charges : les électrons migrent alors sur l'anode tandis que les trous se dirigent vers la cathode. La charge collectée sur les contacts est intégrée par un préamplificateur de charge et convertie en une impulsion dont l'amplitude est proportionnelle à l'énergie déposée dans le cristal. De manière générale, ce type de détecteur est composé :

- d'un cristal de germanium,
- d'un cryostat,
- d'un capot,
- d'une électronique,
- d'un système de refroidissement.

Le cristal est placé dans un cryostat sous vide, et monté dans un support en cuivre (ou en aluminium) appelé « holder ». Le tout est entouré d'un capot en aluminium (cf. figure 2.4.1).

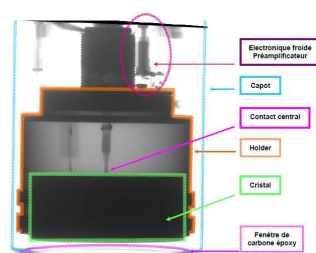


FIGURE 2.4.1: Radiographie d'une diode Germanium de type BeGe

L'électronique comprend le préamplificateur réparti entre une partie froide et une partie chaude. Le détecteur est couplé à un réservoir rempli d'azote liquide à 77K. Le support en cuivre ou en aluminium sert de contact thermique entre le doigt froid relié au réservoir et le cristal. Le refroidissement du cristal est essentiel afin de réduire les courants de fuite dus à l'agitation thermique.

Il existe plusieurs géométries de cristaux : planaires (cristaux sans trou central), coaxiales (cristaux ayant un trou central) et enfin celles qu'utilisent le laboratoire les BEGe (Broad Energy Germanium) qui sont des cristaux planaires cylindriques. Ils se différencient par leur forme, mais également par l'emplacement qu'occupent les dopants autour du cristal (cf. figure 2.4.2).

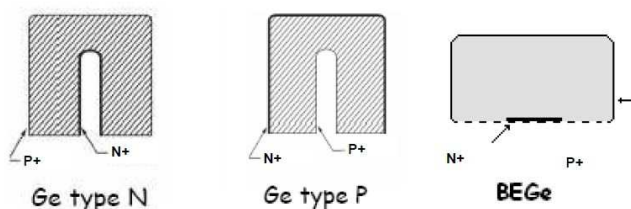


FIGURE 2.4.2: Détecteurs coaxiaux de type N, P et cristal de type BEGe

Les parties occupées par les dopants vont former une partie anode et une partie cathode. Nous allons donc avoir des zones d'équipotentiels, c'est-à-dire des lignes de champ. Ces lignes représentent pour nous la facilité de migration des charges créées par les rayonnements gamma. Ces lignes représentent donc les zones de différentes efficacités de détection à l'intérieur même du cristal de germanium (cf. figure 2.4.3). Cette configuration amène à distinguer les pertes de signal utile :

- au niveau des contacts à cause des dépôts de dopant (bore, lithium). Ceci crée des « zones mortes » dans lesquelles le signal utile ne peut être recueilli,

- liées aux lignes de champ pouvant localement amener une collection nulle ou incomplète des charges. Une collection incomplète a pour effet de dégrader la résolution du détecteur, ce qui se traduit sur le spectre par une « queue à gauche » au niveau du pic d'absorption totale.

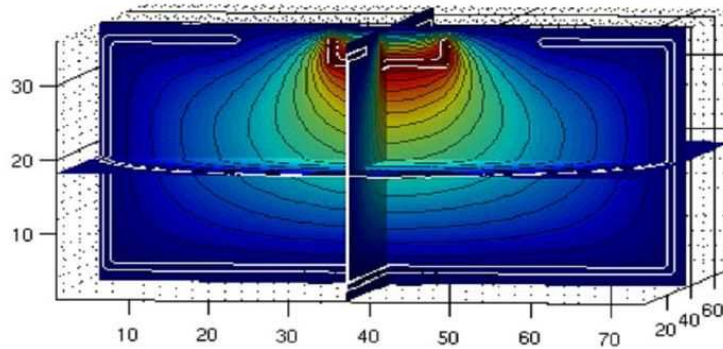


FIGURE 2.4.3: Lignes de champs électriques dans un cristal de Germanium Hyper Pur de type BeGe

Ne connaissant pas les différentes parties dopées du cristal de chaque détecteur et ne connaissant pas non plus les couches de matériaux conducteurs rajoutés sur l'ensemble, ces lignes de champs sont difficilement déterminables. Nous sommes donc contraint de considérer l'efficacité du cristal comme uniforme dans tout son volume.

Pour pouvoir exploiter un spectre et effectuer les différentes analyses demandées par le client, il faut au préalable étalonner le détecteur en énergie et en efficacité. Ceci est réalisé par l'intermédiaire d'une source raccordée au système international. Nous distinguons deux notions d'efficacité :

- L'efficacité intrinsèque : c'est le rapport entre le nombre d'impulsions enregistrées dans le pic d'absorption totale, à une énergie donnée, et le nombre de photons, de même énergie, qui pénètrent dans le cristal. Elle dépend très peu de la géométrie de l'expérience, mais seulement des propriétés du cristal de germanium (dimensions, épaisseur des matériaux inertes, section efficace d'absorption des rayonnements gamma, etc.),
- L'efficacité totale : c'est le rapport du nombre d'impulsions enregistrées dans le pic d'absorption totale au nombre de photons, de même énergie, émis par l'échantillon à caractériser. Dépendant de l'efficacité intrinsèque, l'efficacité va surtout être dépendante des écrans s'interposant entre la source et le détecteur. Elle peut être, en première approximation, décomposée comme la

combinaison de l'atténuation due aux écrans (C_{att}), à la matrice (C_{aut}) et à la géométrie de l'objet à caractériser (C_{geo}).
Ces notions sont représentées de façon schématisée sur la figure 2.4.4.

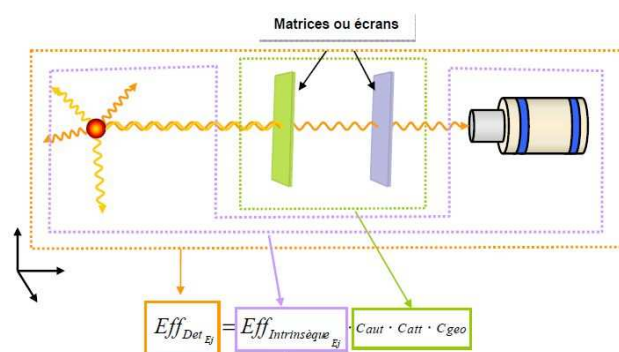


FIGURE 2.4.4: Représentation schématisée des efficacités intrinsèque et géométrique

L'efficacité géométrique est dépendante des différents enchevêtrements d'écrans de matériaux présents entre la source et le détecteur. Au laboratoire, en routine, elle est déterminée par code de calcul de transport de photons gamma permettant notamment la modélisation de la scène de mesure.

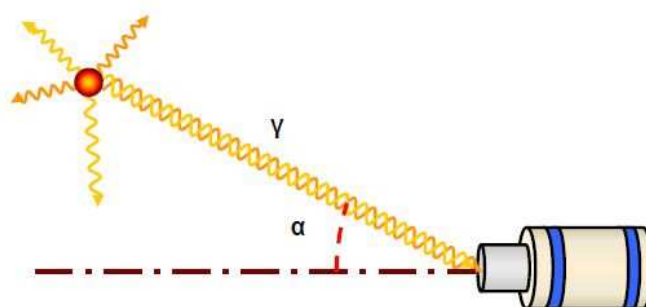


FIGURE 2.4.5: Mesure sur source étalon

Déterminer le rendement intrinsèque du détecteur pour toutes les positions possibles de mesures (réponse du cristal dans l'espace) est la solution donnant les

résultats les plus proches de la réalité mais elle s'avère très lourde. En effet, un détecteur n'aura pas la même réponse suivant l'emplacement de la source dans l'espace. L'angle d'incidence des photons émis par la source par rapport à l'axe du détecteur a une influence sur l'efficacité intrinsèque car dans cette configuration, avant de pénétrer dans le germanium, les photons vont traverser différentes couches de matériaux comme l'aluminium du capot, le cuivre du support du cristal germanium, etc (cf. figures 2.4.1 et 2.4.5). Ces différentes couches vont affecter la réponse du détecteur et cela de manière inégale suivant l'énergie du photon incident. Pour connaître la réponse du détecteur dans toutes les configurations de mesures rencontrées en pratique, il faudrait effectuer des mesures étalon pour chaque situation. Cela est impossible matériellement au vu de la diversité des objets à caractériser et est trop coûteux en temps. De plus, dans la plupart des situations, la reproduction conforme de la scène de mesure est inaccessible à un étalonnage empirique. Seule la détermination du rendement par modélisation peut répondre à cette problématique.

La méthode de caractérisation consiste à déterminer les paramètres du détecteur influençant sa réponse dans l'espace. Pour cela des mesures expérimentales de références sont réalisées et à partir de ces dernières un modèle numérique du détecteur est établi. Ces mesures doivent être précises du point de vue géométrique, c'est-à-dire que la source étalon doit être positionnée dans l'espace avec précision afin que la modélisation qui en découle soit valide. De plus, la fluence de la source doit être garantie, par exemple par son raccordement au système international pour garantir la validité de l'étalonnage.

La caractérisation se découpe en plusieurs phases : dans un premier temps il faut déterminer les différents paramètres du système de mesure ayant une influence sur la réponse du détecteur. Dans un second temps, la réalisation des mesures expérimentales valide le modèle numérique établi. Dans un troisième temps la modélisation du détecteur est réalisée en ajustant les paramètres influents afin que les résultats de simulations soient cohérents avec les mesures expérimentales réalisées.

La réponse du détecteur dans l'espace dépend des dimensions de celui-ci et de l'épaisseur des matériaux présents à l'intérieur du capot. Ces derniers vont jouer ou non un rôle d'écran face aux rayons incidents. On distingue ici deux types de paramètres :

- 1) ceux ayant un impact significatif à maîtriser,
- 2) ceux ayant un impact maîtrisé.

Les paramètres qui ont un impact significatif sur le modèle numérique sont :

- le diamètre du cristal. Il est le paramètre le plus influent sur l'efficacité de détection car il est directement relié à l'angle solide moyen sous lequel est vu le détecteur à partir du point central de la source et donc au nombre de

photons traversant le cristal de germanium,

- la longueur du cristal. Il est prédominant pour la détection des rayonnements gamma de haute énergie (supérieurs à 600 keV), car la longueur de matière traversée par le photon va directement influencer sur la probabilité d'interaction dans le cristal et donc sur l'efficacité intrinsèque de détection de la diode.

Les paramètres ayant un impact maîtrisé sont :

- la distance entre le cristal et le capot. C'est une variable inconnue seulement accessible par radiographie X du détecteur. En effet, le capot du détecteur ne peut pas être retiré facilement sous peine de rompre le vide dans lequel le cristal réside. Cependant, sa variation d'une diode à l'autre est trop faible pour avoir un impact significatif sur la réponse du détecteur et peut donc être négligée,
- l'épaisseur du capot en aluminium. Elle pourrait atténuer le flux de photons mais celle-ci est trop faible pour atténuer de façon significative les photons d'énergie supérieure à 100 keV (environ 1,5 mm). Une estimation de ces paramètres peut être fournie par une radiographie X de la diode.

De manière idéale le cristal de germanium devrait présenter un volume dans lequel la probabilité d'interaction des rayonnements gamma est homogène. Dans la réalité ce volume d'interactions n'est pas uniforme. Plusieurs facteurs font que certaines parties du cristal ne permettront pas la détection du rayonnement traversant, soit parce qu'aucune interaction n'a lieu dans ces parties, soit parce que les charges générées par les interactions ne sont pas collectées par l'électronique d'acquisition. On parle alors de « zone morte ». Le cristal de Germanium peut être considéré comme la zone intrinsèque de notre semi-conducteur, que nous appelons la partie active du cristal. En effet, afin d'avoir une zone dopée P+ et une dopée N- on recouvre le cristal de matière dopante. Généralement on diffuse du lithium en surface du cristal pour créer la région dopée N. La région dopée P est créée par bombardement d'ions de Bore accélérés à 20 keV sur la surface du cristal. Ces deux régions deviennent donc des zones mortes de quelques centaines de micromètres. Négligeables pour la détection de gamma supérieurs à 200 keV, ces zones mortes sont significativement atténuantes pour des énergies inférieures. Elles doivent donc être prises en compte dans la modélisation numérique du détecteur. D'autres phénomènes font que les photons ayant déposé leur énergie dans le cristal peuvent ne pas être détectés : les « pertes » dues à l'électronique, la non collection de charges dans le cristal. Pour modéliser toutes ces pertes de signal, la solution retenue est la modélisation de « zones mortes équivalentes » (zones reflétant les pertes de collection de charges imputables aux différents phénomènes). Ce type de modélisation conduit à obtenir une modélisation ayant le même comportement que le vrai système de mesure, à un critère d'acceptation près, qui est fixé ici à 5%.

Pour valider le modèle numérique établi, un banc de caractérisation spécifique a été réalisé. Le schéma de principe de ce banc est représenté dans les figures 2.4.6 et 2.4.7.

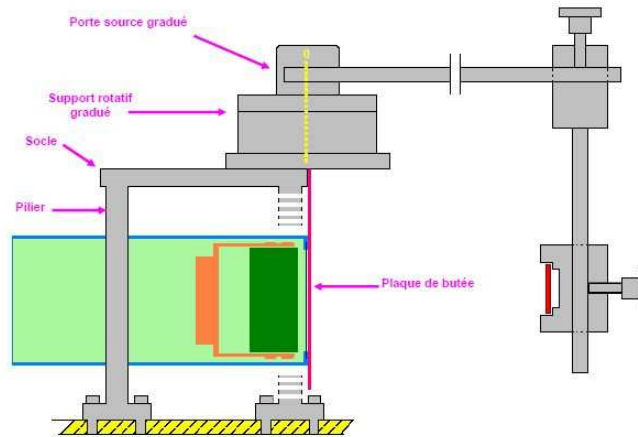


FIGURE 2.4.6: Banc de caractérisation – vue de côté

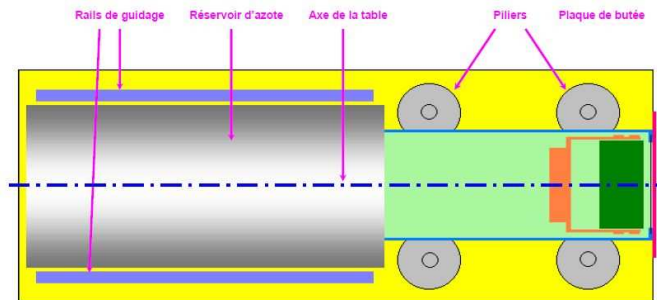


FIGURE 2.4.7: Banc de caractérisation – vue de dessus

Il permet de réaliser des mesures à courtes et longues distances. Les figures ci-dessous décrivent succinctement son fonctionnement. La figure 2.4.8 décrit comment réaliser les mesures « proches » et la figure 2.4.9 comment réaliser les mesures « lointaines » (distance supérieure à 30 cm).

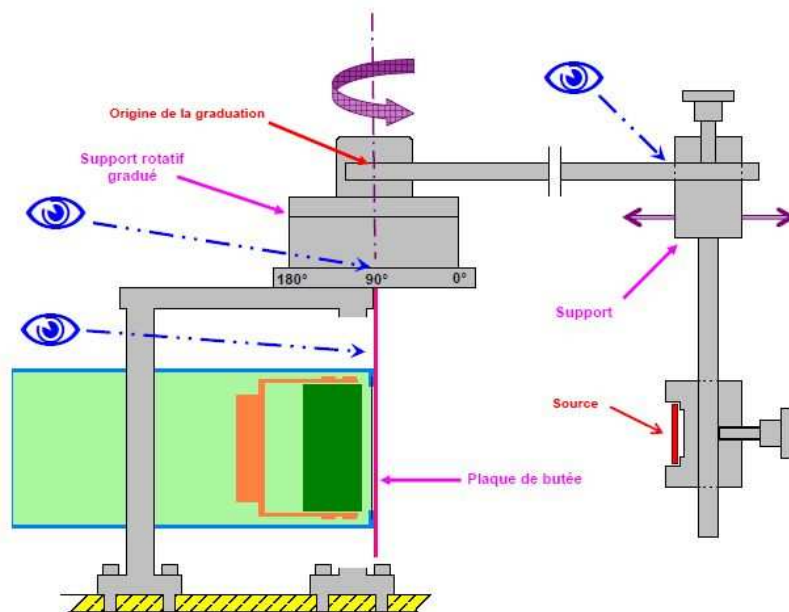


FIGURE 2.4.8: Utilisation du banc à courte distance

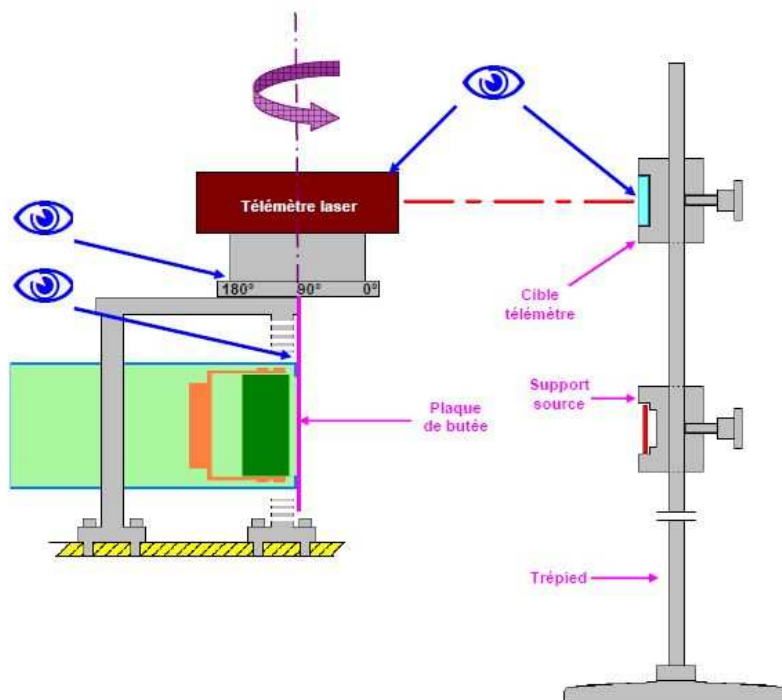


FIGURE 2.4.9: Utilisation du banc à longue distance

Il a ensuite été vérifié que les erreurs engendrées par l'utilisation du banc de caractérisation ne contribuent pas significativement à l'incertitude finale pour la détermination de l'efficacité intrinsèque. Cette vérification a été effectuée sur le positionnement angulaire ainsi que sur le positionnement en distance.

Une fois le matériel requis opérationnel pour l'estimation de l'efficacité intrinsèque du détecteur, il faut établir le modèle numérique représentatif du comportement du détecteur. Pour cela, les cotes figurant sur la figure 2.4.10 constituent une base pour construire le modèle numérique du détecteur, utile pour le code de calcul du transport des particules, ici MCNP. Ces cotes sont soit fournies par le constructeur soit relevées directement sur la radiographie X du détecteur germanium.

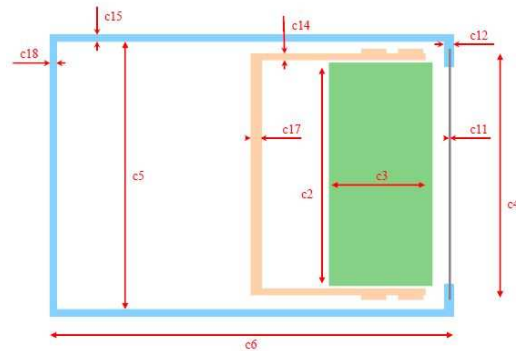


FIGURE 2.4.10: Cotes nécessaires pour la modélisation du détecteur. La partie verte du graphique représente la partie active du capteur (cristal de germanium), la partie mauve le support du cristal germanium et la partie bleue le capot externe du détecteur avec la fenêtre carbone en face avant

Il est à noter que seules les dimensions totales du cristal de germanium sont mesurables. Une radiographie ou bien une observation visuelle de la pièce en germanium ne nous permet en aucun cas de faire état de l'épaisseur de zone morte autour du cristal. Le « modèle standard de comportement équivalent modélisé ». Ce modèle est représentatif du comportement du détecteur, est schématisé dans la figure 2.4.11.

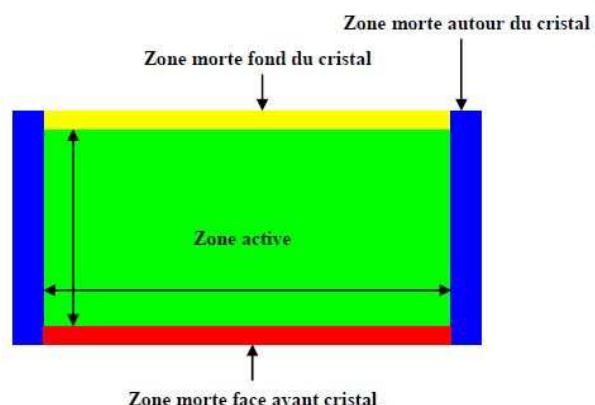


FIGURE 2.4.11: Modèle de détecteur GeHP « équivalent » modélisé

A partir de ces données, il est maintenant possible d'établir le modèle numérique du détecteur. L'hypothèse sur laquelle repose l'algorithme de cette routine d'ajustement est que le constructeur de la diode ou la radiographie X fournit les dimensions du cristal avec un écart maximum de plus ou moins 10%. Nous allons donc considérer que les bornes extrêmes entre lesquelles sont contenues les valeurs recherchées de diamètre et de longueur du cristal de germanium sont à $\pm 10\%$ de la valeur nominale. Afin de converger vers les valeurs optimales, nous allons procéder par dichotomie, c'est-à-dire que nous allons modéliser et simuler la réponse du détecteur en utilisant la valeur médiane des deux bornes extrêmes, afin de séparer en deux populations l'intervalle contenant la valeur recherchée. Suivant le résultat de la simulation une des deux populations pourra être considérée comme vide de solution. On pourra alors déplacer les bornes extrêmes autour de l'autre population. La figure 2.4.12 présente l'organigramme de l'ajustement du diamètre du détecteur.

On fait converger le calcul jusqu'à avoir un écart compris entre -0,5 et 0% avec les données expérimentales. On force ainsi le calcul pour avoir une modélisation sous-estimant l'efficacité du détecteur. En effet dans la pratique la sous-estimation de l'efficacité conduit à la surestimation de l'activité et donc la surestimation de quantité de matière présente dans l'objet mesuré. De plus, la collection de charges n'est pas uniforme dans le cristal de germanium. Notre modélisation ne prend pas en compte les pertes de charges dans le cristal. Notre modèle aura donc des performances supérieures à la réalité si nous gardons les dimensions réelles du cristal. Toutefois, nous avons vérifié que les dimensions du cristal modélisé, à partir de cette méthodologie et de ces hypothèses, sont compatibles avec les cotes relevées à leur incertitude près.

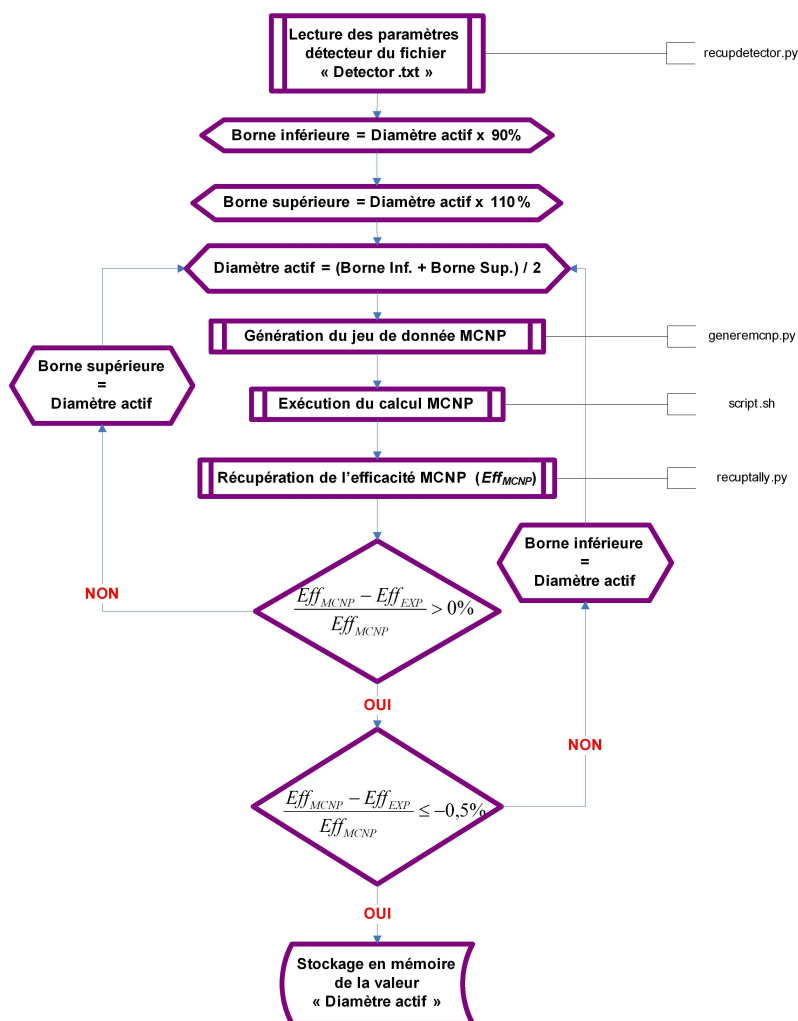


FIGURE 2.4.12: Diagramme de l'ajustement du diamètre du modèle numérique du détecteur GeHP

Une fois cet ajustement réalisé, nous procédons à l'ajustement de l'épaisseur du modèle du détecteur. La figure 2.4.13 présente l'ajustement de l'épaisseur du détecteur.

Sa durée d'exécution est régie par le nombre de points d'ajustement rentrés dans le fichier « parametres.i ». Suivant l'énergie au point d'ajustement, il va être choisi d'ajuster soit le diamètre, soit la longueur du cristal. En effet si l'énergie est inférieure à 600 keV la longueur du cristal sera peu influente sur l'efficacité de détection. Nous nous servons donc des points de faible énergie pour ajuster le diamètre actif du cristal. Une fois cette donnée ajustée, nous utilisons les points de hautes énergies (> 600 keV) pour ajuster la longueur active du cristal.

Chaque point d'ajustement donnant en sortie des valeurs différentes de diamètres et longueurs actifs, ceux-ci sont stockés en mémoire pendant les calculs. Ils sont ensuite repris pour en extraire la moyenne qui sera la valeur finale retenue.

Cette étude nous a permis d'évaluer l'état de l'art existant et de conclure qu'aucune méthode actuellement appliquée ne répondait pleinement à notre besoin. En effet, soit les caractérisations sont obtenues de façon totalement empirique dans le cas des configurations de mesure totalement maîtrisées et reproductibles (mesures avec flacons normalisés), soit elles sont systématiquement couplées à des logiciels de transport de particules propriétaires (et verrouillés) non maîtrisés. Elle nous a donc permis de maîtriser les paramètres entrant en jeu dans une caractérisation, de développer et mettre en œuvre un banc métrologique de caractérisation, d'établir le protocole à appliquer pour obtenir une caractérisation fiable. Toutefois, il reste encore, pour optimiser et ancrer le processus, à valider les facteurs impactant la caractérisation ainsi que leurs interactions pour définir le modèle explicatif (expression analytique) reliant la modélisation du capteur aux mesures expérimentales avec les incertitudes associées.

2.4.2 Validation du logiciel de traitement de spectres

Toujours afin de garantir les résultats de mesure, nous nous sommes intéressés à la qualité du traitement du spectre effectué par les logiciels d'extraction d'aires nettes des spectres gamma. Cette qualité de traitement impacte directement le résultat de mesure, l'activité ou la masse de matière fissile. Les études menées dans ce cadre sont regroupées dans les références [31, 16, 18].

Le spectre d'acquisition est la visualisation graphique du nombre de photons collectés en fonction de leurs énergies déposées dans le cristal de germanium. On observe deux parties distinctes dans un spectre d'acquisition :

- Les pics photoélectriques,

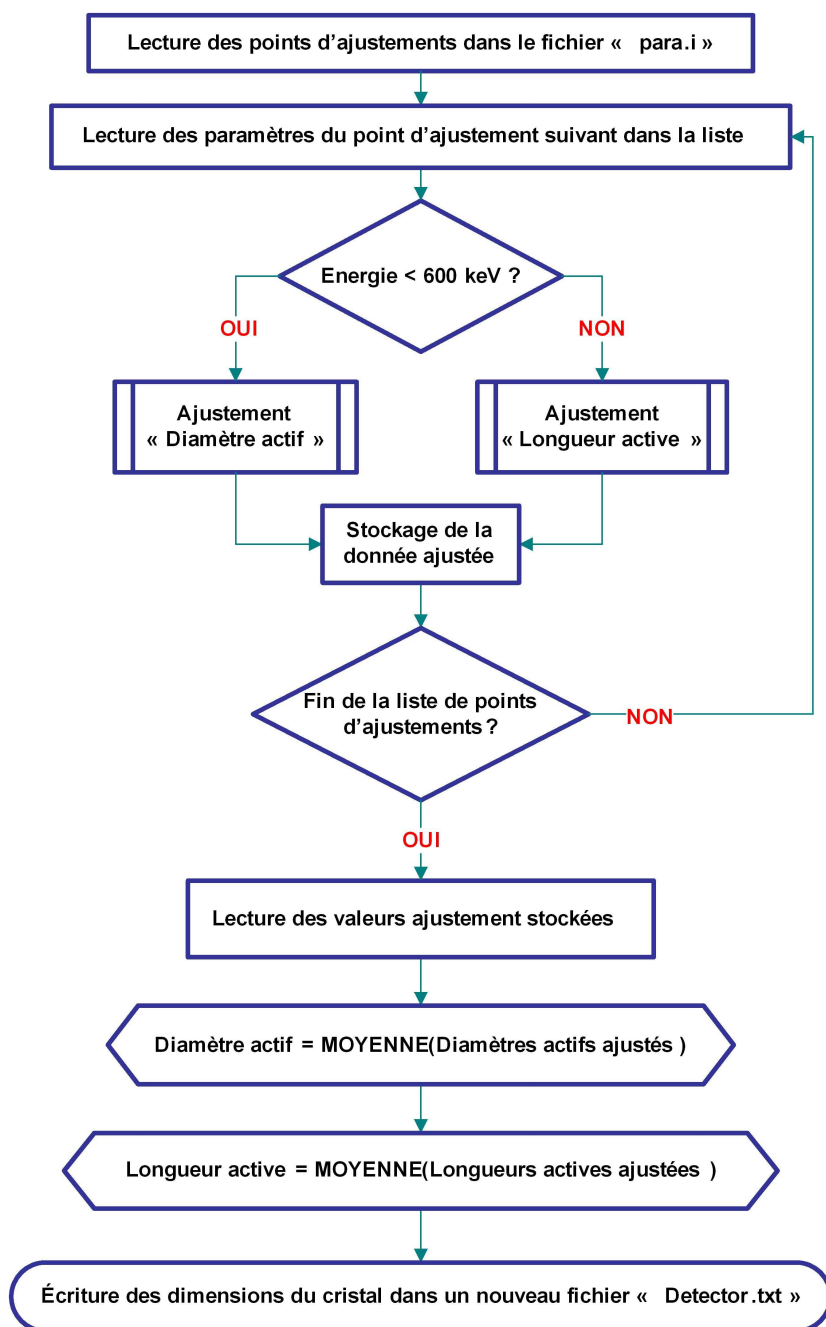


FIGURE 2.4.13: Diagramme de l'ajustement de l'épaisseur du modèle numérique du détecteur GeHP

- Le profil du fond Compton.

Les pics photoélectriques représentent les raies d'émission d'un radionucléide, représentés en rouge sur la figure 2.4.14. Les photons qui ont subi des interactions Compton (avec échappement d'un photon diffusé hors du cristal de germanium) forment un fond continu sous les pics, représenté par le profil vert dans la figure 2.4.14. Le spectre gamma, déduit du bruit de fond de l'environnement de mesure, peut être représenté en 1^{ère} approximation comme la somme de pics photoélectriques (pics d'absorption totale) et d'un fond dû à l'effet Compton.

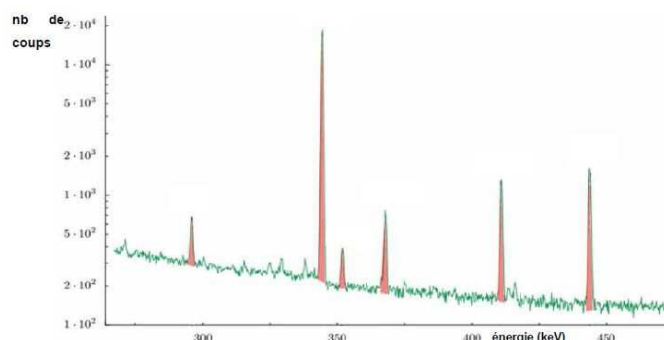


FIGURE 2.4.14: Spectre gamma d'une source étalon d'eupratrium152 entre 250 et 450 keV

Pour identifier et quantifier les radionucléides, les données recherchées dans le spectre sont les énergies et les surfaces des pics. Deux familles de pics sont observables dans un spectre : les singulets et les multiplets. Le multiplet se définit par un chevauchement de plusieurs pics représentés dans le spectre par la somme de ces pics. Le singulet est un pic isolé. Une illustration est donnée figure 2.4.15 : le profil bleu ciel que l'on observe dans le spectre correspond à la somme de 3 pics d'énergies 202, 202,5 et 204,5 keV. L'illustration d'un singulet est donnée figure 2.4.15.

Les spectres traités dans le cadre des mesures de colis de déchets sont complexes car ils contiennent de nombreux radionucléides et présentent des mélanges de multiplets et singulets. La connaissance de l'intégralité des radionucléides dans un objet n'est pas connue a priori. Une recherche de tous les pics est effectuée pour chaque spectre. Les logiciels du commerce se basent sur une méthode utilisant un

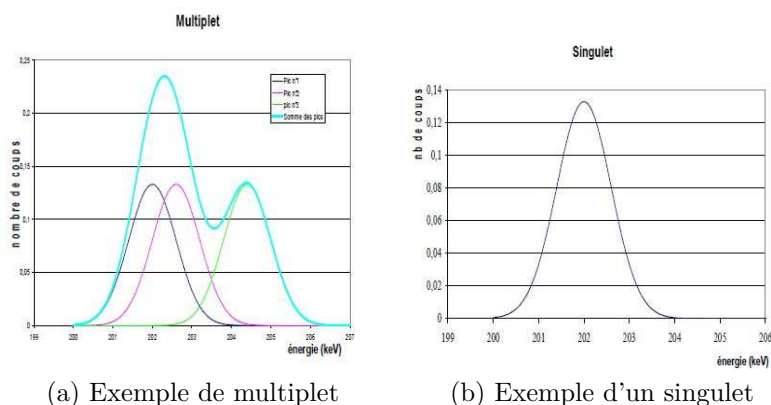


FIGURE 2.4.15: Exemple de multiplet et de singulet

seuil de sensibilité pour l'identification des pics. Plus le seuil de sensibilité est bas, plus le nombre de pics détectés est élevé. La probabilité d'identifier un faux pic est également plus élevée. Pour obtenir un traitement optimal d'un spectre, le seuil de sensibilité doit être adapté pour chaque région du spectre. Pour des raisons de temps consacré au dépouillement, l'opérateur choisi généralement un seuil de sensibilité pour tout le spectre. Ce seuil est choisi pour donner le meilleur compromis entre le temps de traitement du spectre et la qualité des résultats obtenus.

L'extraction des surfaces nettes consiste à déterminer la surface du pic en soustrayant le fond sous le pic. Ce traitement est fait automatiquement par les logiciels du commerce. La qualité de ce traitement dépend de l'identification des pics. Une option dans les logiciels du commerce permet de paramétrer manuellement la déconvolution si le résultat du traitement automatique est mauvais. Un exemple est montré figure 2.4.16 entre un traitement de multiplet effectué avec et sans le paramétrage d'un opérateur. Ce mode de fonctionnement manuel est impossible à réaliser pour un traitement automatisé des spectres. En conséquence le résultat de la déconvolution des multiplets sans l'intervention de l'opérateur n'est souvent pas pris en compte pour la quantification des radionucléides (voir figure 2.4.16). La quantification est faite seulement à partir des résultats de la déconvolution des singulets. Une partie des informations contenue dans le spectre n'est donc pas utilisée.

Le premier logiciel ayant fait l'objet d'une validation par le laboratoire du traitement de l'information extraite du spectre gamma est le logiciel SINBAD. SINBAD est un logiciel de déconvolution par méthode non paramétrique, c'est-à-dire qui ne nécessite pas de réglage de la part de l'utilisateur. Ce logiciel est développé depuis 2005 dans le cadre d'un partenariat CEA/AREVA. Il met en jeu des modèles

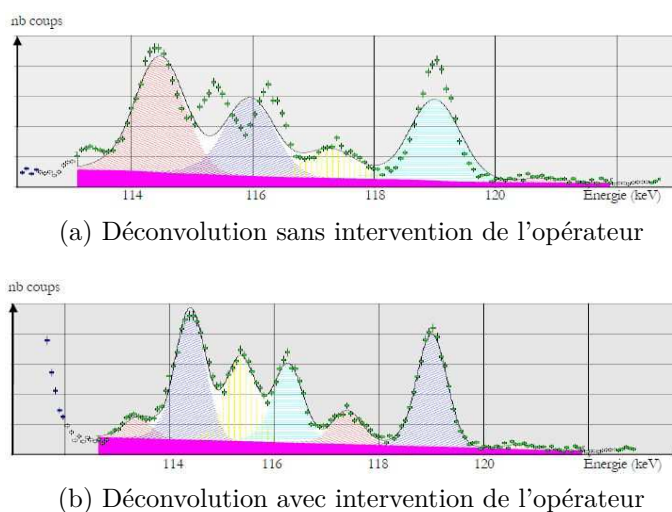


FIGURE 2.4.16: Différence de déconvolution entre le traitement automatisé du logiciel du commerce et celui optimisé par l'intervention de l'opérateur

mathématiques déjà utilisés dans la finance et la médecine, le traitement du signal ou dans la théorie des files d'attente et adaptés à la spectrométrie gamma : la statistique bayésienne, les chaînes de Markov, les processus de Dirichlet, les arbres de Pólya. L'utilisation de ces outils permet en théorie d'extraire toute l'information contenue dans les spectres et avec une meilleure précision que les méthodes classiques.

La quantification est la dernière étape du traitement d'un spectre. Elle permet de connaître l'activité d'un objet mesuré. L'activité des radionucléides est calculée à l'aide de la formule suivante :

$$A(E_i) = \frac{S(E_i)}{\varepsilon(E_i) \cdot t \cdot I(E_i)} \quad (2.4.1)$$

où

- E_i représentent les énergies des photons émis du radionucléide considéré (en keV),
- $A(E_i)$: l'activité du radionucléide évaluée à partir du pic d'absorption totale d'énergie E_i (en Becquerel),
- $S(E_i)$: la surface nette du pic d'absorption totale à l'énergie E_i (en nombre de coups),
- $I(E_i)$: le rapport d'embranchement du radionucléide à l'énergie E_i ,
- $\varepsilon(E_i)$: le rendement de détection de la mesure à l'énergie E_i . Le rendement de détection à l'énergie E_i est défini comme le rapport du nombre de photons

détectés à l'énergie E_i sur le nombre de photons émis par les radionucléides à cette même énergie E_i ,

- t est le temps de mesure actif, éventuellement corrigé du temps mort.

Le temps de mesure t est une donnée maîtrisée ainsi que le rapport d'embranchement du pic I_γ qui est une donnée nucléaire connue. La surface S est déterminée par l'extraction des données brutes du spectre. C'est cette donnée que l'on cherche à maîtriser avec la validation de SINBAD.

De manière générale, la validation d'un processus permet de garantir que le résultat de ce processus est suffisamment proche de la vraie valeur, qui elle est inconnue. Appliquée à notre problématique, la validation doit permettre de garantir que les énergies rendues par SINBAD sont déterminées à $\pm 0,4$ keV de la vraie énergie et que les surfaces nettes sont rendues avec une incertitude maximale de 5% par rapport à la vraie surface.

Avant de détailler les résultats de cette démarche de validation, nous allons donner quelques définitions :

Facteurs : Les facteurs sont les paramètres influents sur la capacité de SINBAD à restituer l'énergie du pic et à extraire la surface nette.

Niveaux : Les facteurs déterminés pour l'étude du système varient sur un domaine d'étude. Ils peuvent le faire de manières discrètes ou continues : ce sont les différents niveaux d'un facteur. Dans notre cas, les facteurs se limitent à trois niveaux discrets : la borne inférieure, la borne supérieure et la valeur médiane.

Réponses : Les réponses correspondent aux grandeurs caractéristiques du phénomène que l'on étudie. Dans notre cas il s'agit de l'écart relatif entre les énergies extraites par SINBAD et les vraies énergies, et de l'écart relatif entre les surfaces nettes déconvoluées par SINBAD et les vraies valeurs des surfaces nettes. Les réponses appliquées à notre problématique le sont de la manière suivante :

$$\Delta S = \frac{S_{SINBAD} - S_{pic}}{S_{pic}} \text{ en } \%$$

$$\Delta E = | E_{SINBAD} - E_{pic} | \text{ en keV}$$

où :

- ΔS représente l'écart relatif pour les surfaces,
- S_{SINBAD} représente la surface déconvoluée par SINBAD,
- S_{pic} représente la surface théorique du pic,
- ΔE représente l'écart relatif pour les énergies,
- E_{SINBAD} représente l'énergie du centroïde du pic déterminée par SINBAD,
- E_{pic} représente l'énergie du centroïde du pic théorique.

Par la suite, les pics gamma seront indicés 1 et 2 de telle sorte que l'indice 1 correspond au pic n°1 et l'indice 2 au pic n°2. Le pic n°1 aura toujours une aire nette supérieure ou égale à celle du pic n°2.

Nous commençons par lister tous les paramètres d'un spectre qui ont une influence potentielle sur les réponses de SINBAD. Les facteurs sont définis de manière à connaître les limites du traitement de déconvolution par SINBAD, plus particulièrement dans le cas des multiplets. Les facteurs concernant les pics d'absorption sont les suivants :

- Facteurs relatifs aux pics d'absorption
 - l'écartement entre 2 pics (exprimé en fonction de la résolution du détecteur, c'est-à-dire en $DKV = k \cdot \sigma$ avec $\sigma = LTMH/2,355$, $LTMH$ étant la largeur totale à mi hauteur du pic), noté DKV dans la suite du document. DKV traduit directement le chevauchement d'un pic sur l'autre. Le chevauchement maximal de deux pics correspond donc à un DKV égal à 0. Dans ce cas, les deux pics sont confondus et ne seront jamais discriminés quelle que soit la méthode de déconvolution. La borne minimum de DKV sera donc choisie supérieure à 0. Nous fixons DKV variant de 1 à 4σ car notre retour d'expériences indique que le seuil limite de SINBAD pour discriminer 2 pics se situe a priori dans cet intervalle,
 - l'énergie du pic 1 en keV, notée KV1 dans la suite du document (l'énergie du pic 2 s'obtient par le calcul $KV1 + DKV$). Les radionucléides que l'on cherche le plus souvent à quantifier possèdent des raies d'émission principales d'énergie variant entre 100 et 600 keV. Nous choisirons donc cette plage de variation pour KV1,
 - le rapport des surfaces nettes des pics est notée $S21 = S2/S1$ où S2 est la surface nette du pic 2 et S1 la surface nette du pic 1. La plage de variation de S21 est choisie en fonction des valeurs relevées sur des spectres d'acquisition, c'est-à-dire de 0,01 à 1,
 - La surface du pic 1 en nombre de coups, notée S1 dans la suite du document. La surface du pic 2 s'obtient par le calcul $S1 \times S21$. La plage de variation de S1 est choisie en fonction des valeurs relevées sur des spectres d'acquisition, c'est-à-dire de 10 à 10000.
- Facteurs relatifs au fond. Nous représentons le fond par la somme de deux fonctions : une droite de forme $y = b \cdot x + c$ et une forme sinusoïdale de forme $a \cdot \sin(w \cdot E)$. La somme de ces deux fonctions permet de générer des fonds plus chaotiques que ceux rencontrés en réalité (voir l'exemple de la figure 2.4.17), ce qui a pour but d'augmenter la difficulté de la déconvolution. Les paramètres des fonctions : b , c , a et w sont les facteurs relatifs au fond.
- Le paramètre que nous notons IBF représente la valeur du premier canal de la zone à déconvoluer (en nombre de coups). C'est aussi l'ordonnée à

- l'origine de la droite de forme $y = b \cdot x + c$. La variation de IBF est choisie par rapport aux valeurs relevées sur des spectres d'acquisition,
- Le paramètre que nous notons FBF représente la valeur du dernier canal de la zone à déconvoluer (en nombre de coups). La pente du fond (coefficient b dans l'équation $y = b \cdot x + c$) est alors déterminée par : $b = \frac{FBF-IBF}{nbcanaux}$ où $nbcanaux$ est le nombre de canaux de la zone à déconvoluer. Les valeurs de la pente b sont choisies par rapport aux valeurs relevées sur des spectres d'acquisition. FBF peut donc être calculée avec l'équation ci-dessus,
 - Le paramètre w représente la pulsation du sinus. Elle est définie par : $w = \frac{T}{2 \cdot \pi}$ où T est la période du sinus (en canaux),
 - Le paramètre a représente l'amplitude du sinus en nombre de coups.

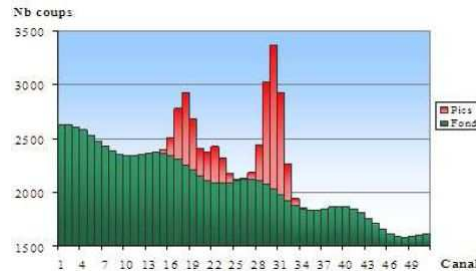


FIGURE 2.4.17: Exemple de fond sinusoïdal considéré pour la validation. Le profil des pics est constitué d'un multiplet de 2 pics (entre les canaux 15 et 25) et d'un singlet dont le centroïde est le canal 30

Pour réaliser une validation complète de SINBAD et étudier plus finement ses performances, nous validons ensuite la déconvolution des singulets et la déconvolution des multiplets séparément. La validation des singulets sera réalisée en premier et ses résultats seront utilisés pour la validation des multiplets. Nous validerons ainsi le comportement de SINBAD pour toutes les configurations de pics. La figure 2.4.18 présente le schéma directeur de la validation.

Les résultats du plan fractionnaire sont présentés sur la figure 2.4.19. Ils permettent d'éliminer les facteurs qui n'ont pas d'influence sur la réponse. Parmi ceux-ci figurent les facteurs liés au fond.

Les résultats du plan fractionnaire sont les suivants :

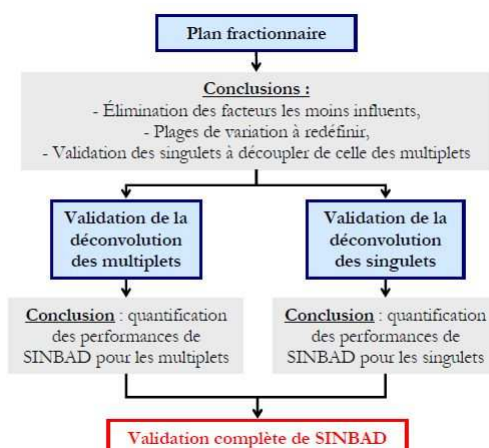
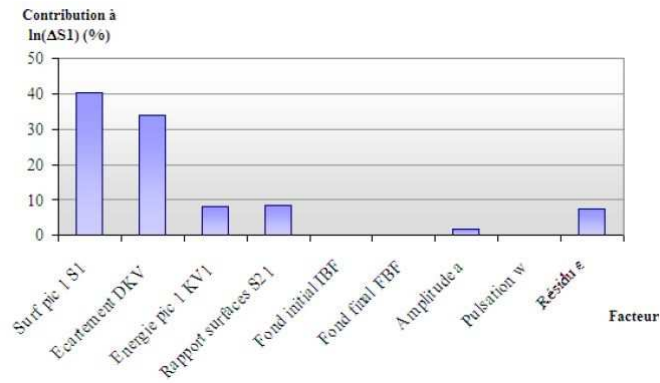
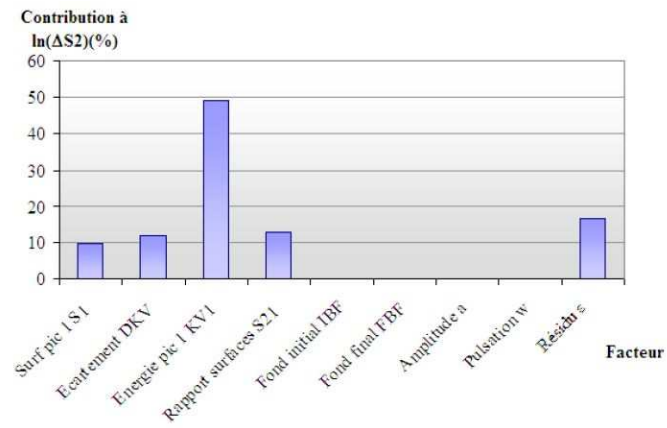


FIGURE 2.4.18: Schéma directeur de la validation. La première étape est la réalisation du plan de Taguchi. La deuxième étape consiste à valider séparément la déconvolution des multiplets et la déconvolution des singulets. La réalisation de la deuxième étape permet la validation complète de SINBAD

1. L'analyse du plan fractionnaire a mis en évidence l'influence négligeable des facteurs caractérisant le fond (fond initial IBF, fond final FBF, amplitude a et pulsation w). Ils ne sont donc pas pris en compte dans la suite de l'étude. Plutôt que d'essayer de modéliser le fond par une formule mathématique, nous considérons pour la suite 3 fonds différents tirés de spectres d'acquisition et représentatifs des fonds Compton observés dans les spectres d'acquisition. Les performances calculées avec ces 3 fonds seront transposables à n'importe quel autre spectre étant donné que leurs caractéristiques (valeur du canal initial, pente, pulsation ...) ont été étudiées dans le plan fractionnaire. La figure 2.4.20 présente ces 3 fonds.
2. Le facteur KV1 (énergie du pic 1) étant écarté de la suite de l'étude, les facteurs qui impactent directement les performances de SINBAD sont S1 la surface du pic 1, DKV l'écartement entre les 2 pics et S21 le rapport des surfaces nettes des 2 pics,
3. Une mauvaise définition des plages de variation des facteurs est mise en évidence par le nombre important de pics non déconvolués (23 pics déconvolués sur les 54 générés pour les 27 essais du plan fractionnaire). L'ajustement des facteurs et de leurs plages de variation est donc nécessaire avant d'étudier précisément les performances de SINBAD,
4. Les réponses $\Delta E1$ et $\Delta E2$ sont toujours inférieures à 2 canaux. Toutes les énergies des pics sont donc rendues avec un écart inférieur à 2 canaux (0,4



(a) réponse $\ln(\Delta S1)$



(b) réponse $\ln(\Delta S2)$

FIGURE 2.4.19: Synthèse de la contribution de chaque facteur à la réponse

keV).

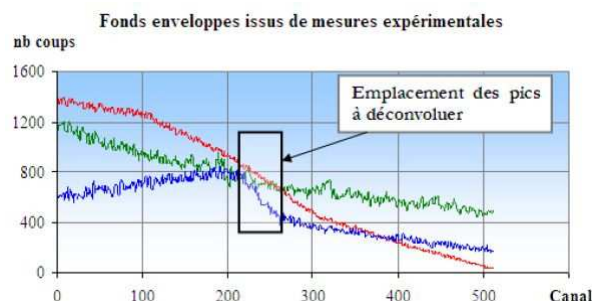


FIGURE 2.4.20: Fonds choisis pour la suite de l'étude. Les pics à déconvoluer sont générés entre les canaux 220 et 260, là où la pente varie le plus d'un fond à l'autre. Le fond bleu possède la pente la plus importante, le fond vert la pente la plus faible et le fond rouge la pente moyenne

Les résultats du plan fractionnaire montrent une mauvaise définition des niveaux des facteurs d'influence, à savoir le rapport des surfaces de deux pics S_{21} , l'écartement entre les pics DKV et la surface du grand pic S_1 . En étudiant les résultats du plan fractionnaire, nous remarquons que les pics non déconvolués ont soit une valeur de DKV minimale (c'est-à-dire $DKV = 1\sigma$), soit une valeur de S_1 minimale (c'est-à-dire $S_1 = 10$ coups). Nous pouvons donc légitimement penser que les valeurs minimales de leur plage de variation ont été fixées à des valeurs trop basses.

La surface d'un pic est directement proportionnelle au temps de mesure et si celui-ci est suffisamment important, les pics du spectre auront des surfaces supérieures à la valeur maximale de la plage de variation de S_1 (c'est-à-dire 10000 coups). Les résultats de la validation ne pourront alors pas être appliqués à ces pics. Contrairement à la surface, le rapport signal sur bruit du pic ne dépend pas du temps de mesure. Nous le notons RSB dans la suite. RSB est défini par : $RSB = \frac{S+B}{B}$ où S est la surface du pic et B le fond sous le pic (voir figure 2.4.21). En effet, si le temps de mesure est multiplié par deux, la surface S et le fond B sont multipliés par deux. Le RSB reste donc inchangé. De plus, le RSB des pics est facilement calculable vu que le numérateur de l'équation RSB correspond directement au nombre de coups dans les canaux du spectre et que SINBAD restitue le fond B sous le pic.

La plage de variation du RSB est déterminée de la façon suivante :

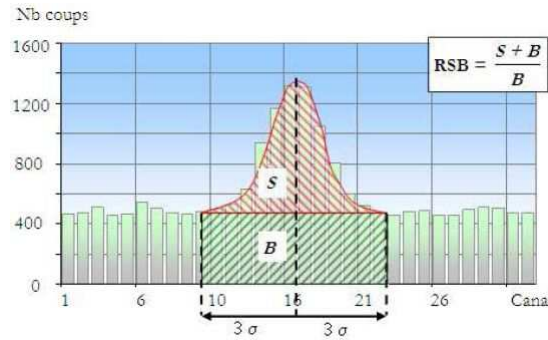


FIGURE 2.4.21: Illustration du rapport signal sur bruit d'un pic. Le RSB est défini par $\frac{(S+B)}{B}$ où B est le fond sous le pic (calculé sur l'intervalle $\pm 3\sigma$) et $S+B$ est la somme du contenu des canaux sur l'intervalle $\pm 3\sigma$

- premièrement, de par sa définition, le RSB d'un pic est strictement supérieur à 1 (quand S tend vers 0, le RSB tend vers 1),
- deuxièmement, notre retour d'expérience sur l'utilisation de SINBAD tend à montrer que des pics de RSB compris entre 1 et 1,2 ne sont pas détectés car noyés dans la fluctuation statistique du fond. Nous fixons alors la plage de variation du RSB variant de 1,25 à 10. Comme pour le plan fractionnaire, nous saurons si cette plage de variation est judicieuse une fois les essais du plan factoriel complet réalisés.

Pour l'ajustement du facteur d'écartement DKV et grâce à la réalisation du plan fractionnaire, nous savons qu'un écartement entre les pics de 1σ est trop faible et fait échouer systématiquement la déconvolution SINBAD. Nous choisissons alors de faire débiter DKV à 2σ . Comme pour le RSB, nous saurons si cette valeur de 2σ est judicieuse une fois les essais du plan factoriel complet réalisés.

DKV traduit le chevauchement de 2 pics. Si nous voulons réaliser une validation exhaustive de toutes les configurations de multiplets, la valeur maximale de DKV, notée DKVMAX, doit correspondre à un chevauchement minimal entre les pics. Nous déterminons DKVMAX tel qu'en considérant deux pics de rapport des surfaces 0,01 (c'est-à-dire la valeur minimale de S_{21}), le chevauchement du grand pic sur le petit représente 1% de la surface du petit pic. En pratique, cet écart de 1% n'aura pas d'influence sur les résultats de la déconvolution car la hausse induite par ce pour cent sur le contenu des canaux du petit pic sera négligeable par rapport à la fluctuation statistique de comptage. La figure 2.4.22 illustre l'obtention de DKVMAX.

À un écartement de 7σ , la contribution du grand pic dans le petit représente

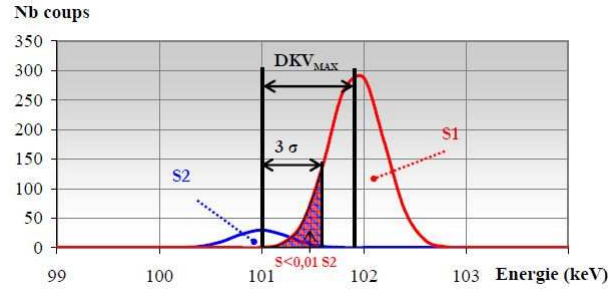


FIGURE 2.4.22: Configuration de pics permettant d'obtenir DKVMAX. Le principe est d'augmenter l'écartement entre les pics jusqu'à ce que l'aire hachurée représente moins de 1% de l'aire totale du petit pic, notée S2. Dans l'exemple, l'écartement entre les 2 pics est de $4,5\sigma$

0,93%. Nous fixons donc $DKV_{MAX} = 7\sigma$. Bilan : nous étudierons DKV sur l'intervalle $[2\sigma, 7\sigma]$.

Nous pouvons passer maintenant à la validation finale du logiciel SINBAD. Nous validerons dans un premier temps les singulets puis dans un second temps les multiplets.

Pour la validation des singulets, le seul facteur d'influence à étudier est le RSB (les deux autres paramètres n'existant pas en ne considérant qu'un seul pic). Il n'est donc pas nécessaire de mettre en place un plan d'expériences. Les résultats permettent de conclure que pour les singulets :

$$\Delta S < 5\% \text{ dès que } RSB > 1,35$$

Pour la quantification des performances de SINBAD sur la déconvolution des multiplets, nous procédons à un plan d'expériences factoriel complet dont les facteurs d'étude sont :

- le rapport signal sur bruit RSB, qui varie entre 1,25 et 10,
- l'écartement des pics DKV qui varie entre 2 et 7σ ,
- le rapport des surfaces S21 qui varie entre 0,01 et 10 (rappel : $S21 = S2/S1$).

L'influence de ces 3 paramètres est étudiée en considérant successivement les 3 fonds expérimentaux définis précédemment.

Le modèle obtenu est fonction des 3 paramètres RSB, S21 et DKV. Pour la validation, nous visons un écart sur $\Delta S2$ inférieur à 5% (c'est-à-dire $\ln(\Delta S2) \leq 1,609$). $\Delta S2$ représente l'écart entre la réponse sur la surface du pic 2 et la valeur vraie de la surface du pic 2. Nous cherchons donc le domaine tel que le triplet (RSB, S21, DKV) vérifie : $\alpha_{RSB} \cdot RSB + \alpha_{S21} \cdot S21 + \alpha_{DKV} \cdot DKV + \beta_{RSB,DKV} \cdot RSB \cdot DKV + \beta_{S21,DKV} \cdot S21 \cdot DKV + \beta_{RSB} \cdot RSB^2 + \beta_{S21} \cdot S21^2 + \epsilon \leq 1,609$

Les graphiques de la figure 2.4.23 illustrent ce domaine à 5% avec 3 coupes à $DKV = 2\sigma$, $DKV = 4,5\sigma$ et $DKV = 7\sigma$. Nous nous apercevons notamment que plus DKV augmente, plus le domaine à 5% est grand, donc plus la déconvolution est précise.

En répétant la démarche sur les 3 plans d'expériences complets, nous obtenons 3 domaines à 5% pour $\ln(\Delta S1)$ et 3 domaines à 5% pour $\ln(\Delta S2)$.

En leur fournissant les caractéristiques des pics déconvolués (RSB, S21 et DKV), ces modèles permettent de déterminer l'écart entre les surfaces restituées par SINBAD et les surfaces nettes des pics d'absorption. On peut ainsi garantir que les surfaces rendues par SINBAD sont rendues avec la précision recherchée, dans notre cas 5%.

Afin d'automatiser l'utilisation des modèles de comportement, nous avons développé une routine que nous intégrons dans le code source de SINBAD et qui s'exécute automatiquement une fois la déconvolution terminée. Son principe consiste à traiter chaque pic détecté l'un après l'autre. Pour chaque pic, sa distance d au pic le plus proche est calculée en nombre de σ . Deux cas se présentent alors :

- Si d est supérieur à 7σ pour l'obtention de cette valeur, le pic est considéré comme étant un singulet. Le calcul de son rapport signal sur bruit permet de déduire l'écart entre la surface rendue par SINBAD et la surface recherchée. En effet, si son RSB est inférieur à 1,35, l'écart induit par la déconvolution est supérieur à 5% et un message d'avertissement est formulé à destination de l'utilisateur. Si le RSB est supérieur à 1,35, la surface rendue par SINBAD est garantie à moins de 5% de la valeur recherchée,
- Si d est inférieur à 7σ , les 2 pics sont assimilés à des multiplets. Le rapport signal sur bruit des 2 pics et le rapport de leurs surfaces sont calculés. L'utilisation des modèles de comportement obtenus lors de la validation des multiplets permet d'estimer les écarts induits par la déconvolution pour chaque pic.

Le modèle choisi est celui qui donne l'écart maximal. Si cet écart est supérieur à 5%, un message d'avertissement est formulé à destination de l'utilisateur. La figure 2.4.24 récapitule le traitement des résultats de déconvolution SINBAD.

Ce travail permet de disposer d'un outil d'extraction des énergies et des surfaces nettes des pics d'absorption validé et dont nous maîtrisons les performances. Cette validation permet aussi de garantir la surface nette utilisée par la suite dans la détermination de l'activité des radionucléides. De plus, elle garantit l'ensemble du traitement et de l'extraction de l'aire nette et non plus, comme dans tous les

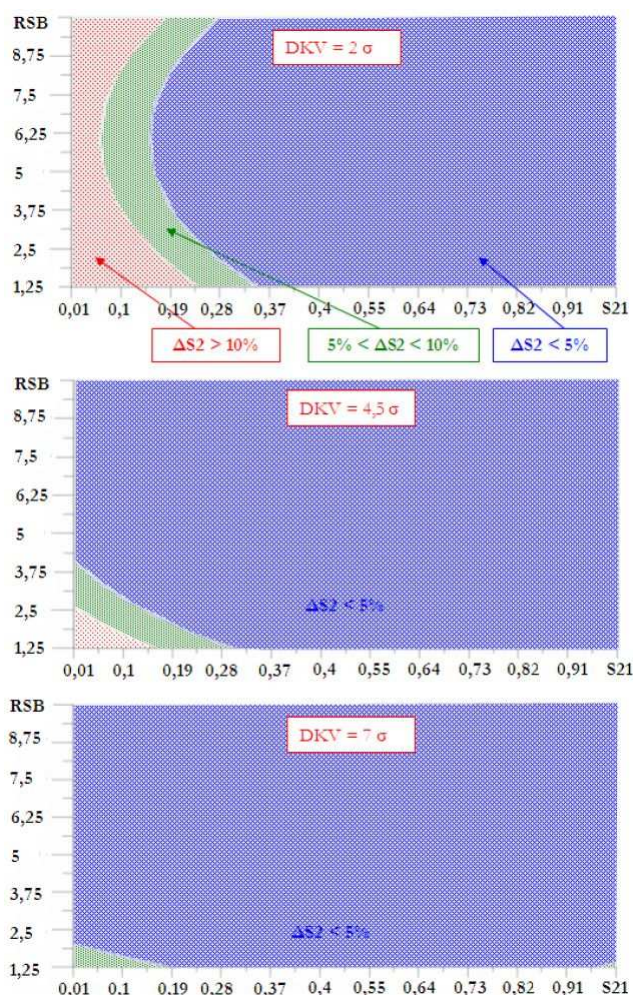


FIGURE 2.4.23: Représentations 2D du modèle de $\ln(\Delta S2)$ en fixant DKV à 3 valeurs particulières : le minimum (graphe du haut), la moyenne (graphe du milieu) et le maximum (graphe du haut). Plus l'écartement entre les pics augmente, plus le domaine à 5% devient important, donc plus $\Delta S2$ diminue. L'abscisse de chaque graphique représente S21, l'ordonnée représente le RSB

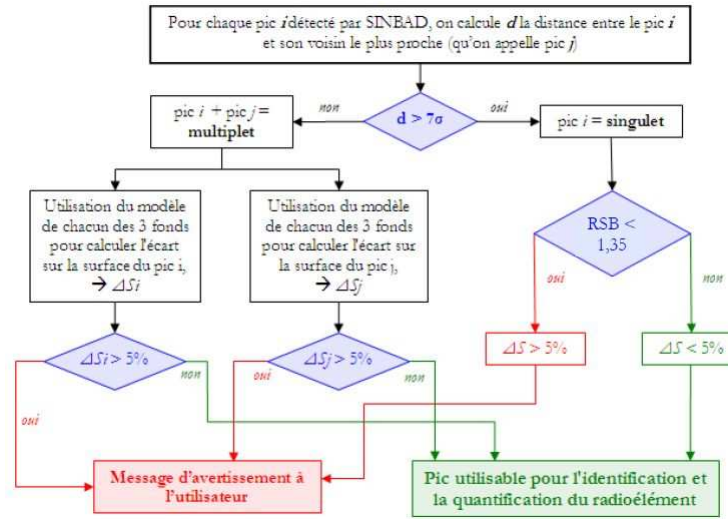


FIGURE 2.4.24: Principe de fonctionnement de la routine de traitement des résultats SINBAD

logiciels d'extraction d'aires nettes du commerce, uniquement l'incertitude sur la fluctuation statistique du fond et de l'aire nette. En ce sens, cette étude est nouvelle et montre clairement que l'incertitude statistique sur l'aire nette extraite n'est pas suffisante pour estimer l'incertitude liée à la valeur de la surface S (Cf équation 2.4.1) utilisée pour quantifier la réponse (activité ou masse fissile). La démarche utilisée peut de plus être adaptée à tout type de logiciel de traitement de spectres gamma.

2.4.3 Innovation dans le traitement de spectres gamma

Cette étude est issue de [31, 18]. La quantification des radionucléides passe par l'extraction des énergies et des surfaces nettes des pics du spectre et par la détermination du rendement de détection. L'activité d'un radionucléide est calculée par l'équation 2.4.1.

L'étude présentée dans ce paragraphe est la définition d'une méthode nouvelle de calcul du rendement $\varepsilon(E_i)$ et de son incertitude associée basée sur les informations contenues dans le spectre. Actuellement, l'estimation du rendement de détection est assujéti à des hypothèses a priori discrètes qualitatives (nature de la matrice) nécessitant un choix de la part de l'opérateur de mesure. Plus le retour d'expérience de l'opérateur sera important, meilleure sera la qualité de ce choix. La maîtrise du processus d'extraction des données est donc primordiale. Le rendement de détection peut se décomposer en deux termes : d'une part, le rendement intrinsèque du détecteur (Cf paragraphe 2.4.1) et d'autre part, l'atténuation des photons dans

l'environnement de mesure, y compris dans l'objet à caractériser. Si on appelle $\varepsilon(E)$ le rendement de détection à l'énergie E , $\varepsilon_{\text{détecteur}}(E)$ le rendement intrinsèque du détecteur à l'énergie E et $Att(E)$ la correction d'atténuation du signal à l'énergie E , le rendement de détection peut être exprimé par : $\varepsilon(E) = \varepsilon_{\text{détecteur}}(E) \cdot Att(E)$. Le rendement intrinsèque du détecteur $\varepsilon_{\text{détecteur}}(E)$ est obtenu par la mesure d'une source étalon d'activité connue ou par une modélisation numérique du détecteur. La correction d'atténuation des photons dans la configuration de mesure d'objets de type surconteneur (fût, boîte à gants, ...) est beaucoup plus difficile à déterminer car en plus de varier en fonction de l'énergie des photons, elle dépend d'un nombre important de variables propres à l'objet à caractériser (et la plupart du temps inconnues) :

- les constituants de l'objet : formes géométriques, densités, épaisseurs, composition physico-chimique des matériaux, ... ,
- l'agencement de ces constituants : de façon homogène, de façon hétérogène avec un fort gradient de densité, ... ,
- la localisation des radionucléides : dans un milieu plus ou moins atténuant,
- la répartition des radionucléides : concentrés dans un petit volume, dispersés de façon homogène ou dispersés en plusieurs points dans des matériaux différents (suivant le cas, le rayonnement émis ne traversera pas les mêmes matériaux).

En exprimant, en première approximation, l'atténuation en fonction de ces paramètres, le rendement de détection devient :

$$\varepsilon(E) = C_{\text{matrice}}(E) \cdot C_{\text{autoAtt}}(E) \cdot C_{\text{écrans}}(E) \cdot C_{\text{géo}}(E) \cdot \varepsilon_{\text{détecteur}}(E)$$

où :

- $\varepsilon_{\text{détecteur}}(E)$ est le rendement intrinsèque du détecteur,
- $C_{\text{matrice}}(E)$ représente la correction d'atténuation du signal photonique dans les matériaux non radioactifs du déchet,
- $C_{\text{autoAtt}}(E)$ est la correction d'autoabsorption du signal, c'est-à-dire l'atténuation dans les éléments radioactifs du déchet, par exemple, des matières nucléaires denses et concentrées dans un petit volume,
- $C_{\text{écrans}}(E)$ représente la correction d'atténuation du signal dans les écrans situés entre l'objet et le détecteur,
- $C_{\text{géo}}(E)$ est la correction qui permet de passer de la géométrie d'étalonnage de la chaîne de mesure (la plupart du temps ponctuelle) à la géométrie de l'objet mesuré.

Les coefficients de cette équation sont fortement liés entre eux et des interactions entre facteurs existent (l'atténuation dans la matrice dépend de la géométrie de l'objet).

Actuellement, la détermination du rendement de détection est principalement basée sur le retour d'expérience et sur les a priori formulés sur les caractéristiques

physico-chimiques des déchets. Le rendement est déterminé au cas par cas par l'opérateur de mesure, ce qui rend impossible une éventuelle automatisation. De plus, les méthodes actuelles ne permettent pas d'évaluer correctement l'incertitude associée au rendement de détection numérique.

L'étude que nous proposons est basée sur l'utilisation des informations contenues dans le spectre d'acquisition. Cette méthode calcule le rendement de détection et l'incertitude associée. Elle permet de plus de s'affranchir de la connaissance précise de l'environnement de mesure et des a priori formulés actuellement par l'opérateur. La détermination du rendement de détection peut ainsi s'effectuer de façon automatisée. Elle est basée sur l'utilisation des équations suivantes et ce sont les évaluations combinées de ces quantités qui permettent d'estimer l'activité du radionucléide multiémetteur gamma :

$$\varepsilon(E_i) = \frac{S(E_i)}{A(E_i) \cdot t \cdot I(E_i)}$$

$$\varepsilon_{rel}(E_i) = \frac{S(E_i)}{t \cdot I(E_i)}$$

$$\varepsilon_{rel}(E_i) = A \cdot \varepsilon(E_i)$$

Cette équation montre que le rendement relatif $\varepsilon_{rel}(E_i)$ est proportionnel au rendement de détection. Pour déterminer le rendement de détection $\varepsilon(E_i)$, la difficulté est donc de déterminer le terme A . La méthode permettant de déterminer ce terme se base sur l'ajustement des points de rendement relatif par une fonction spécifique, dont le mode de calcul est présentée ci-dessous. La figure 2.4.25 permet de visualiser comment le rendement de détection est calculé à partir des points de rendement relatif :

1. les points de rendement relatif sont calculés à partir du spectre,
2. ces points sont ajustés par la fonction spécifique,
3. la fonction spécifique est translatée du facteur A .

Le résultat de ces opérations donne le rendement de détection.

Toutefois pour effectuer le raccordement entre le rendement de détection intrinsèque et le profil donné par les points de rendement relatif, il faut établir un modèle explicatif global. Le premier modèle proposé est donné par l'équation suivante :

$$\varepsilon_{rel}(E) = A \cdot e^{-(\mu_{Cd}(E) \cdot x_{Cd})} \cdot \frac{1 - e^{-(\mu_{Pu}(E) \cdot x_{Pu})}}{(\mu_{Pu}(E) \cdot x_{Pu})} \cdot 10^{\left(\sum_{i=0}^4 (a_i \cdot E^{-i}) \right)}$$

Les grandeurs connues sont :

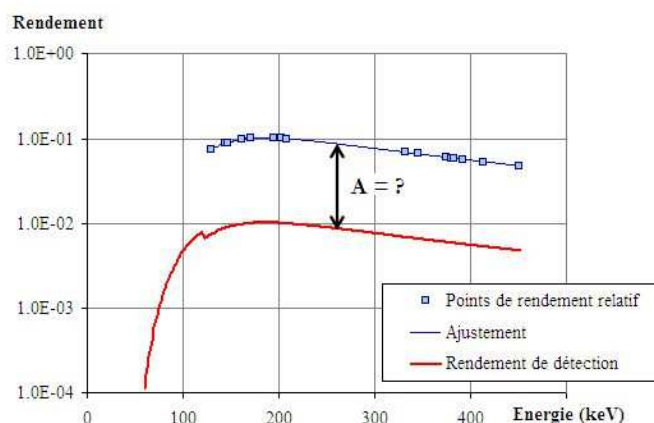


FIGURE 2.4.25: Détermination du rendement de détection à partir des points de rendement relatif calculés grâce aux pics du spectre. Les points sont ajustés par une fonction spécifique et traduits du facteur A. Le résultat de ces opérations aboutit à la valeur du rendement de détection

- les valeurs d'atténuation linéaire du cadmium et du plutonium, μ_{Cd} et μ_{Pu} , qui sont compilées dans des bases de données nucléaires. Le cadmium et le plutonium sont les matériaux pris comme référence de façon arbitraire,
- les paramètres a_i qui sont déterminés par la mesure d'une source étalon qui émet des rayonnements gamma sur la gamme d'énergie d'intérêt,
- le rendement relatif qui est calculé à partir du spectre d'acquisition sur les différentes raies d'un multi émetteur gamma avec $\varepsilon_{rel}(E_i) = \frac{S(E_i)}{t \cdot I(E_i)}$ où E_i représente l'énergie des différentes raies du radionucléide.

Les grandeurs inconnues du modèle sont :

- l'épaisseur équivalente d'écran, x_{Cd} ,
- l'épaisseur équivalente de matrice, x_{Pu} ,
- A l'activité du multi émetteur utilisée pour calculer le rendement relatif.

Les grandeurs inconnues sont déterminées par un ajustement par la méthode des moindres carrés sur les points de rendement relatif. A connue, le rendement de détection s'obtient avec l'équation : $\varepsilon(E_i) = \frac{\varepsilon_{rel}(E_i)}{A}$. Le rendement de détection étant déterminé, les radionucléides présents dans le spectre gamma peuvent être quantifiés.

Ce modèle a montré ses limites sur des cas complexes. Nous avons testé et montré que cette méthode permet de déterminer, de façon automatisée, le rendement de détection à partir des données du spectre, sans aucune hypothèse a priori formulée par l'opérateur, pour des objets dont les dimensions sont très faibles devant la distance de mesure. Elle donne aussi accès à l'estimation de l'incertitude associée à

la réponse, là encore de façon automatisée, sans hypothèse a priori de l'opérateur. Des études complémentaires sont toutefois nécessaires pour que notre méthode puisse traiter des géométries quelconques. Ces études mettent en œuvre les codes de calcul de transport de particules, les modèles explicatifs de la réponse obtenus par plan d'expérience et certainement des outils statistiques non paramétriques (loi de Bayes, chaînes de Markov, méthode Monte-Carlo,...).

2.4.4 Dispositif MADAGASCAR

Ce paragraphe ne détaille pas une étude mais présente un appareil et une méthode de mesure déployée sur le site de Valduc. La méthode de mesure est décrite dans [20, 8]. Ce système de mesure est dénommé MADAGASCAR qui est l'acronyme de Mesure Automatisée des Déchets Alpha Guidés Automatisement Sur des Convoyeurs à Rouleaux. MADAGASCAR est l'installation de mesures par spectrométrie gamma dédiées aux fûts de déchets.

Il s'agit d'un moyen de mesure permettant la correction de matrice par source de transmission. Ce système quantifie l'activité des fûts, de manière empirique, de n'importe quel radionucléide émetteur gamma (sauf l'euporium 152, qui est le radionucléide de la source interrogatrice). L'activité du fût est estimée en tenant compte des effets d'atténuation dus à la matrice sans avoir recours à des hypothèses a priori concernant le fût (masse volumique, composition chimique de la matrice, etc...), ceci grâce à une source de rayonnement gamma située à l'extérieur de l'objet à caractériser. La méthodologie choisie repose sur le postulat suivant : la procédure de remplissage des fûts de déchets fait qu'il apparaît des variations importantes de densité, de matrices et de répartition de contaminant. Dans ces fûts, les inhomogénéités radiales sont souvent moins prononcées et leurs effets peuvent être substantiellement réduits par une mise en rotation du fût de déchets à caractériser. Par contre, pour palier la contrainte liée à la variation verticale de densité, un découpage du fût en plusieurs tranches peut-être réalisé grâce à un collimateur spécifique. Sur MADAGASCAR, pour satisfaire les conditions énoncées ci-dessus, le fût est mis en rotation et le détecteur, collimaté, se translate verticalement, sur 3 tranches, par pas réguliers de 27 cm, pour acquérir les spectres utiles à la détermination de l'activité des fûts de déchets. Simultanément, un second détecteur non collimaté acquiert un spectre sur l'ensemble du fût afin d'effectuer un calcul d'isotopie du plutonium et/ou de l'uranium. Par conséquent, l'activité totale du fût de déchets est la somme des activités évaluées sur chaque tranche du fût. Au total, 7 spectres gamma sont acquis par fût à caractériser. Le principe de mesure, pour chaque tranche d'un fût, est le suivant :

1. une acquisition de spectre est réalisée avec la source d'interrogation afin de déterminer l'atténuation du fût de déchets à caractériser. Cette acquisition

sert à corriger en conséquence la courbe d'efficacité permettant de remonter à l'activité du fût,

2. une acquisition de spectre est réalisée sans la source d'interrogation afin de calculer les surfaces nettes des pics d'émission. Le second détecteur, effectuant une acquisition sur le fût entier, fournit l'isotopie Pu du fût de déchets à caractériser.

La combinaison de la surface des pics d'émission du fût avec l'efficacité de détection corrigée de l'atténuation donne l'activité du rayonnement émis. Ensuite, l'activité des radionucléides émetteurs multi pics est déterminée avec l'activité de chaque pic d'émission de ce radionucléide. Ainsi, avec pour seule hypothèse que les « tranches » du fût à caractériser sont homogènes, cette méthode permet de s'affranchir de la sensibilité de la mesure vis-à-vis de la matrice. Cette méthode est applicable pour des radionucléides autres que l'euporium 152, pour des énergies allant de 121,8 à 1408,1 keV.

La chaîne de mesure fonctionne de manière automatique dès qu'un fût est positionné. Elle peut être réapprovisionnée à tout moment en fonction de la disponibilité du convoyeur qui a une capacité d'accueil de 10 fûts. Le fût est mis en rotation et l'acquisition démarre alors automatiquement. La figure 2.4.26 présente une photographie de ce moyen de mesure.

La mise en œuvre de cet appareil de mesure et de sa méthode associée m'a permis d'appréhender la problématique de la mesure automatisée de fûts. L'enjeu est de caractériser l'activité radiologique de chaque fût de déchets produit avec son incertitude associée. La solution optimum est de pouvoir réaliser cette caractérisation de façon automatisée. L'appareil MADAGASCAR permet de remplir cet objectif. Toutefois, cette méthode présente une certaine lourdeur de mise en œuvre, de coût de maintenance et ne permet pas une expertise manuelle du fût si ce dernier sort du domaine de validité de l'appareil de mesure ou s'il contient de l'euporium 152.

Le retour d'expérience accumulé par le fonctionnement et la mise en œuvre de MADAGASCAR permet le dimensionnement d'un nouveau moyen de mesure intégrant les dernières nouveautés en termes de capteur, de méthodes et surtout de robustesse de méthode, de souplesse de maintenance et de retraitement des mesures, à moindre coût. Un tel système sera basé sur la modélisation numérique adaptée au cas par cas à l'atténuation de la matrice en présence grâce à une correction par source d'interrogation. Il s'agira d'une mesure globale du fût et non plus segmentée, ce qui aura pour avantage d'augmenter la statistique de comptage, de réduire les durées d'acquisition et d'éliminer les effets d'« ombre » de la collimation ainsi que l'étape de cumul d'activité dans les segments.

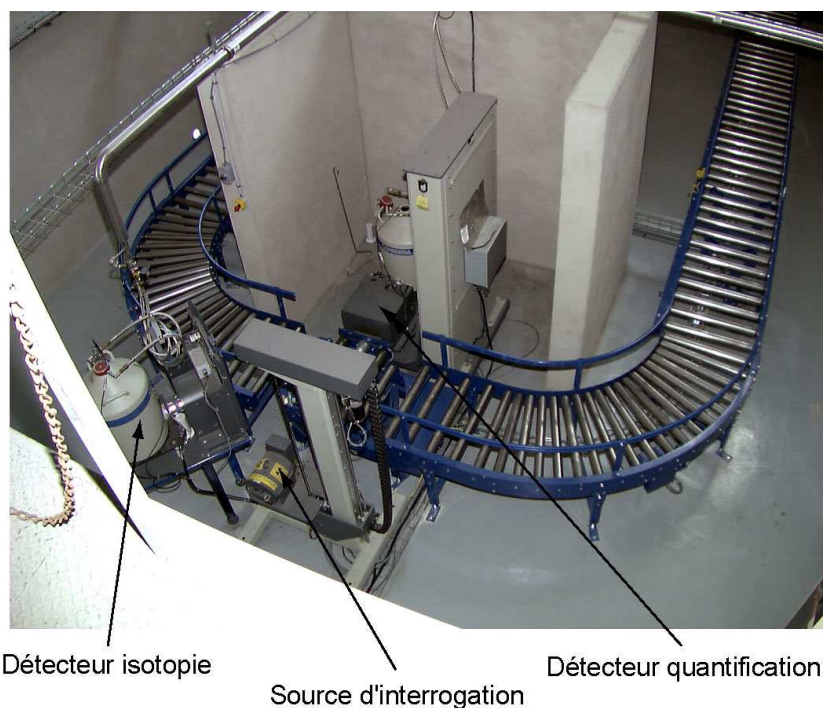


FIGURE 2.4.26: Photographie de MADAGASCAR. Le « détecteur isotopie » sert à déterminer l'isotopie plutonium ou uranium présente dans le fût à caractériser. La « source d'interrogation » est liée avec le « détecteur quantification ». Cet ensemble permet la quantification des radionucléides émetteurs gamma présents dans le fût à caractériser. Les fûts suivent le chemin tracés par les convoyeurs à rouleaux

2.5 Métrologie de la spectrométrie alpha

L'évaluation des activité alpha présentes dans les effluents peut être réalisée par spectrométrie alpha. Actuellement, la méthode appliquée est une méthode destructive. Sur le site de Valduc, les activités des effluents varient de moins de 400 Bq/m^3 jusqu'à $11,2 \text{ GBq/m}^3$ suivant le type de cuve d'effluents. Le processus actuellement appliqué pour la mesure alpha est présenté sur la figure 2.5.1. La mesure alpha n'est appliquée que pour les effluents ne dépassant pas une activité d'environ 2 kBq . Au dessus de cette activité, une mesure par spectrométrie gamma est mise en œuvre.

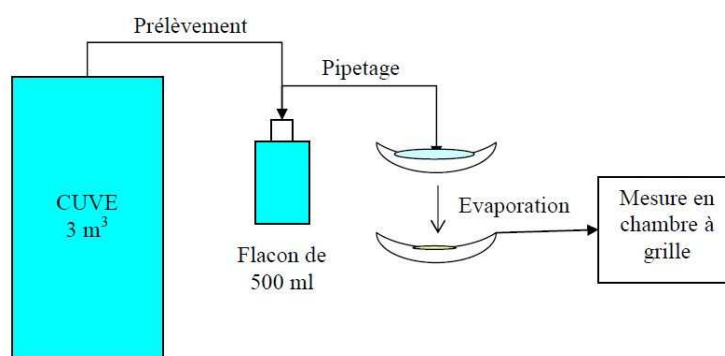


FIGURE 2.5.1: : Méthode actuelle de mesurage de l'activité alpha

L'étude présentée ici a pour but de faire passer la méthode destructive actuelle de spectrométrie alpha à une méthode non destructive, in situ, et ce même pour des activités supérieures à 2 kBq . Les enjeux liés sont le gain sur la durée de mise en œuvre, la meilleure représentativité de la mesure (plus d'échantillonnage), de couvrir la gamme d'activité $2 \text{ kBq} - 1 \text{ MBq}$ pour le plutonium (1 MBq représente le limite de détection que nous avons actuellement au laboratoire en spectrométrie gamma sur des effluents conditionnés dans des volumes de 500 ml).

L'idée de base pour pouvoir faire de la spectrométrie alpha une mesure non destructive est d'utiliser un code de calcul de transport 3D de particules alpha. En effet, comme, en spectrométrie gamma, une fois la modélisation du détecteur validée, il sera alors possible d'établir le coefficient d'étalonnage correspondant à la situation in situ de l'effluent à caractériser. Le fait que le milieu soit toujours quasiment identique (effluent aqueux), le faible libre parcours moyen des alpha, qui fait qu'il n'y aura pas de perturbations attendues de l'environnement de mesure sont les principaux facteurs permettant cette transition.

Une première étude a portée sur l'influence de la pression de liquide et de la température sur la densité de la solution. En effet, la densité est un facteur impactant le transport de particules, notamment alpha. La pression des effluents est déterminée par la relation fondamentale de l'hydrostatique : $\frac{P_1}{\rho \cdot g} + z_1 = \frac{P_2}{\rho \cdot g} + z_2 \Rightarrow P_2 = P_1 + (\rho \cdot g) \cdot (z_1 - z_2)$, avec P la pression de l'effluent, z la hauteur de liquide, g l'accélération de la pesanteur et ρ la densité de l'effluent. Il apparaît que la variation de densité en fonction de la profondeur de la cuve est négligeable (inférieure à 0,001% pour un ρ de 314 g/l pour une hauteur d'effluents de 3 mètres). La densité de l'eau varie avec la température. En considérant que la température, pour le même effluent, varie de 15 à 30°C (variation de température ambiante), l'impact sur la densité est de 0,1%. Cette étude montre que ces variations ont un impact non significatif sur l'incertitude finale attendue puisque cette dernière sera, a minima de 5% (cette estimation est basée sur le retour d'expérience actuel en spectrométrie alpha). Un autre facteur significatif sur l'incertitude finale associée au résultat est la densité de l'effluent. Ce paramètre est connu puisque mesuré pour chaque cuve. L'incertitude associée (donnée par mesure de salinité) pourra donc être directement intégrée au calcul final de l'incertitude. Toutefois, si ce paramètre n'est pas connu, alors l'incertitude relative maximale engendrée sur le rendement de détection est estimée à 16 % (à k=1), pour une salinité variant entre 0 et 300 g · l⁻¹ et ce quelle que soit la dimension du détecteur.

Le code de transport de particules MCNPX permet la modélisation du transport des particules alpha. Mais, comme nous n'avions aucun retour sur la validité de ce type de modélisation, notre première étude a donc consisté à réaliser une première validation de ce code pour les alpha. Pour cela, nous sommes partis d'un détecteur utilisé en routine au laboratoire pour la spectrométrie alpha : la chambre à grille. La chambre à grille peut être modélisée comme une cavité cylindrique. Le gaz est composé de 90% de méthane et de 10% d'argon. Dans ce type de détecteur, chaque particule alpha ionise le gaz de telle manière qu'elle est systématiquement détectée. Ce mode de détection sous un angle solide de 2π stéradians permet d'obtenir des rendements de détection proche de 50%. La source étalon est une source de plutonium 239 de « 160,7 Bq dans 2π stéradians » (activité totale d'environ 321,4 Bq mais les particules alpha émises vers le support sont perdues). Les chambres à grille sont dimensionnées de manière à ce que toute l'énergie des particules soit déposée (parcours des alpha infini). La figure 2.5.2 montre la modélisation MCNPX d'une telle chambre à grille.

Le taux de comptage obtenu expérimentalement est de 155,6 impulsions par seconde donc le rendement de détection est de 48,9% à 2% (à k=1). La modélisation donne un rendement de 51,25% à 0,02% (à k=1). Ce résultat de modélisation est

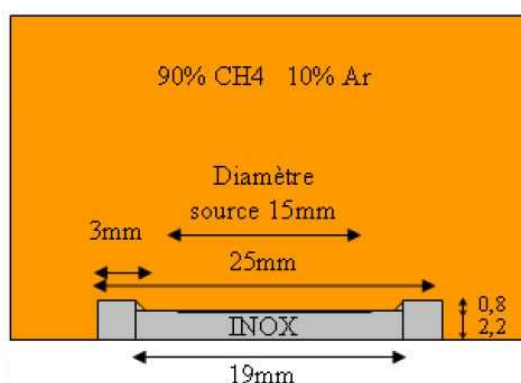


FIGURE 2.5.2: Modélisation MCNPX d'une chambre à grille

tout de même cohérent car le rendement théorique d'une chambre à grille peut être supérieur à 50% à cause des rétrodiffusions Rutherford des particules alpha sur les noyaux du support en acier inoxydable. La figure 2.5.3 montre le spectre modélisé (forme violette) et le spectre expérimental (forme noire) obtenus.

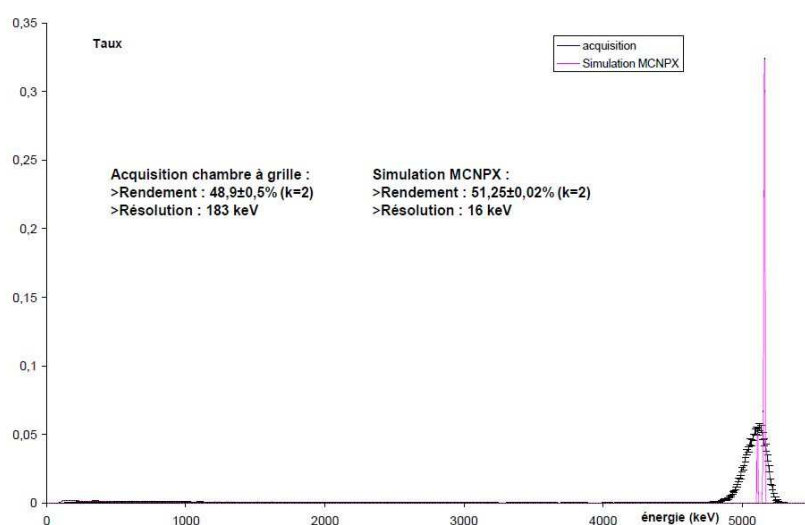


FIGURE 2.5.3: Spectres obtenus par modélisation et expérimentation

La résolution de cette chambre en énergie, obtenue expérimentalement, est d'environ 183 keV. La modélisation donne une résolution de 16 keV (cf figure 2.5.3). La dégradation de la résolution de la chambre à grille provient d'une dérive de l'électronique qui a été corrigée a posteriori de l'expérience. La résolution nominale

d'une telle chambre est de 50 keV. Les défauts de collection de charges dépendant de la qualité du gaz argon-méthane ne sont pas modélisés. Ceci explique aussi la différence observée entre la valeur de rendement mesurée et celle calculée par MCNPX.

Une autre comparaison modélisation-expérience a été réalisée sur un effluent réel issu du procédé : le distillat. Un distillat (activité faible) est prélevé et évaporé sur une coupelle puis une mesure en chambre à grille est réalisée. L'analyse du spectre a révélé les résultats suivants avec une incertitude associée de 20% : $6,61 \cdot 10^4 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ d'uranium soit 19,8% de l'activité totale ; $1,28 \cdot 10^5 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ de plutonium 239 soit 38,4% de l'activité totale ; $1,39 \cdot 10^5 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ d'américium 241 soit 41,7% de l'activité totale. Une modélisation est réalisée en considérant que le dépôt obtenu après évaporation est composé d'une croûte de sel (NaCl) contaminée de densité $2,165 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$. Les résultats expérimentaux et simulés sont présentés sur la figure 2.5.4.

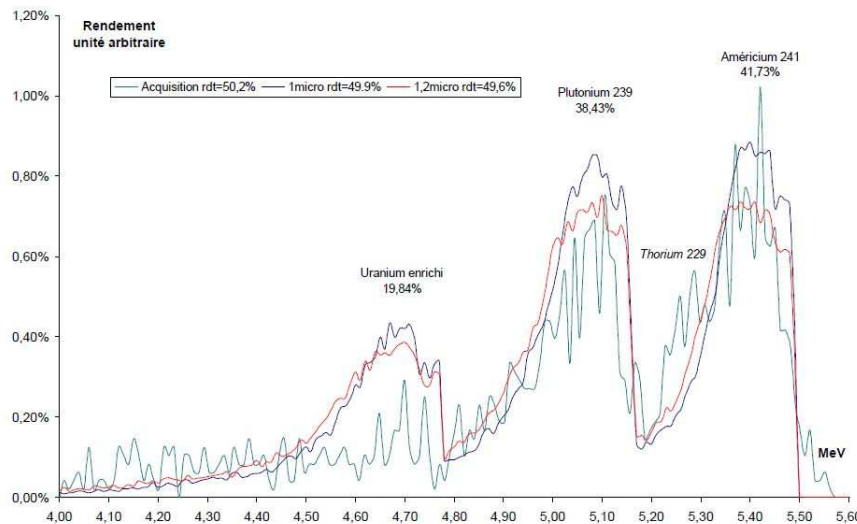


FIGURE 2.5.4: Spectre modélisé et expérimental d'un distillat

L'épaisseur du dépôt de sel a été ajustée dans la modélisation afin de coller au spectre obtenu expérimentalement. Elle est estimée environ à $1,2 \mu\text{m}$. L'activité en uranium a été probablement surestimée lors de l'analyse. On remarque un pic vers 5300 keV qui correspond certainement au thorium 229. Ce spectre montre que la modélisation de spectrométrie alpha par MCNPX donne un modèle assez juste de l'effet de traîne dû à l'autoabsorption dans le dépôt et peut constituer une aide

précieuse au rendu final d'activité. Elle permet, de plus, d'aller beaucoup plus loin dans l'interprétation des spectres alpha.

Une dernière comparaison modélisation expérience a été réalisée, non plus avec une chambre à grille, mais avec un détecteur semi-conducteur de type PIPS (Passivated Implanted Planar Silice). Cette comparaison a été réalisée avec une source étalon de plutonium 239. La source étalon est placée dans une chambre équipée d'un détecteur PIPS de 450 mm². La configuration de mesure est représentée sur la figure 2.5.5.

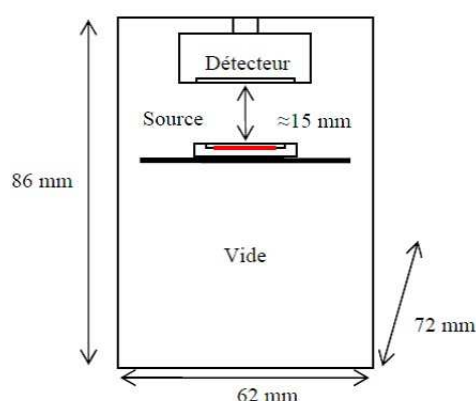


FIGURE 2.5.5: Géométrie de la chambre alpha avec détecteur de type PIPS à l'échelle 2/3

Les spectres obtenus sont présentés sur la figure 2.5.6. Dans les chambres alpha, la largeur du pic provient de la différence de parcours des particules alpha dans la zone morte du détecteur et des défauts de collection de charges. Le taux de comptage obtenu expérimentalement est de 26 coups par seconde, donc le rendement de détection est de 8,14% à 5% (à $k=1$). La modélisation donne un rendement de 8,62% à 0,3% (à $k=1$). Ces différences doivent probablement provenir des incertitudes géométriques du modèle, en particulier au niveau de la zone morte du détecteur. En effet, nous avons modélisé une épaisseur de zone morte de 0,5 μm (issu de la documentation du capteur PIPS) et qui est une épaisseur forfaitaire pouvant évoluer d'un détecteur à un autre.

Cette étude démontre que le code de calcul MCNPX est apte à déterminer des coefficients d'étalonnage ajustés à chaque effluent à caractériser. L'étude suivante,

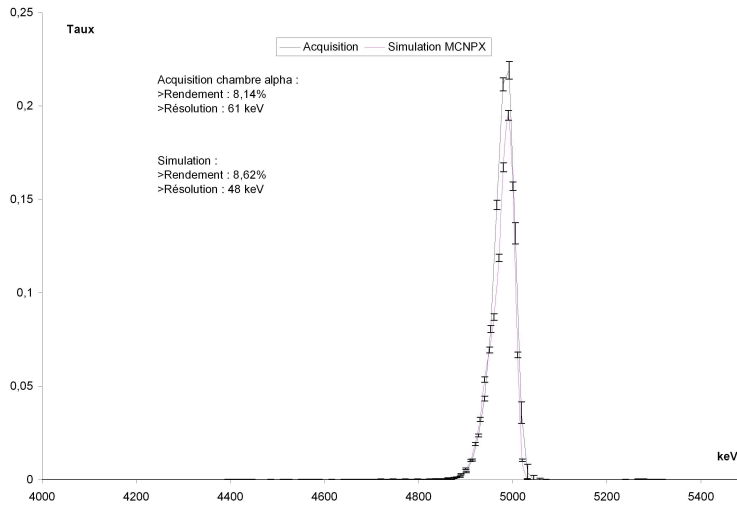


FIGURE 2.5.6: Spectres obtenus par modélisation et expérimentation avec un capteur PIPS dans la configuration de mesure de la figure 2.5.5

toujours pour pouvoir réaliser une mesure alpha non destructive in situ, porte sur l'épaisseur d'effluent maximale permettant d'obtenir une information spectrométrique de l'émetteur alpha.

Lors d'une mesure non destructive, le capteur alpha se trouvera en immersion dans la solution (effluent ou déchet liquide). Dans une telle configuration, le milieu est assimilé à une source d'épaisseur infinie. L'acquisition d'un spectre d'une source d'épaisseur infinie ne permet pas d'obtenir des raies à cause de l'autoabsorption dans la solution (détection de particules alpha dont l'énergie varie entre E_{max} et 0). La seule possibilité, pour réaliser une spectrométrie, est de contrôler l'épaisseur de la source. Ceci est effectué en faisant passer une lame de liquide radioactif devant le détecteur. Un tel système est mécaniquement réalisable, mais il est confronté au problème des impuretés contenues dans le liquide qui peuvent être plus grosses que l'épaisseur de cette lame. Nous avons utilisé le code de calcul MCNPX pour optimiser l'épaisseur de cette lame dans le cadre de la spectrométrie. Cette optimisation a été réalisée à partir du spectre du distillat précédent et elle est présentée sur la figure 2.5.7. Cette modélisation montre qu'une spectrométrie est réalisable pour une épaisseur de lame inférieure à $2 \mu m$ dans le cas d'un détecteur parfait (sans zone morte, ni défauts de collection de charge). Au dessus d'une telle épaisseur, aucune déconvolution des pics n'est possible et seule une mesure en alpha totale pourra être réalisée. Une solution à ce problème, mais qui n'a pas été validée expérimentalement, est de procéder à une électroprécipitation. Ce procédé a été développé lors d'une collaboration entre mon laboratoire et un laboratoire du CEA de Saclay. Son principe est décrit dans [9].

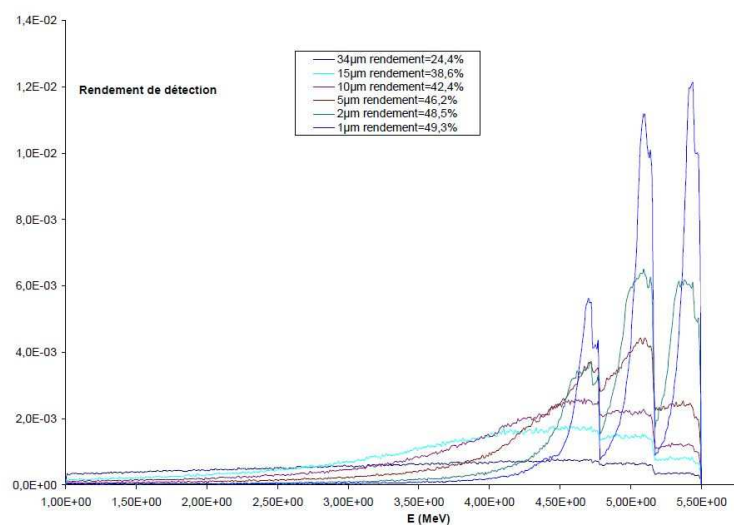


FIGURE 2.5.7: Modélisation de l'épaisseur de la lame de liquide nécessaire pour la spectrométrie

Une fois la faisabilité de l'acquisition de spectre α en immersion, en solution, démontrée, nous allons déterminer comment obtenir une quantification de l'activité α de la solution à caractériser. Pour la mesure en ligne, l'utilisation de la méthodologie d'un étalonnage de référence (avec source de référence), basé sur le parcours maximum des alpha ne permet pas de déterminer le rendement de détection lorsque le détecteur est plongé dans la solution. En effet, dans la pratique, il est difficile de pouvoir déterminer le rendement de détection du détecteur expérimentalement (création d'une solution au plus proche de celle de la cuve, solution qui varie constamment au cours du temps et qui est la plupart du temps inconnu). La modélisation avec le code de calcul MCNPX permet d'évaluer ces grandeurs. Tous les paramètres connus sur la cuve (comme l'isotopie, les gradients de densité et d'activité) doivent être pris en compte dans la modélisation afin d'obtenir un rendement de détection le plus proche possible de la réalité.

Pour rappel, l'activité de l'effluent est obtenu à partir de la relation :

$$A(E_i) = \frac{S(E_i)}{\epsilon \cdot t \cdot \Gamma(E_i)}$$

avec :

- $S(E_i)$: surface des impulsions relevées sous le pic d'énergie (E_i),
- ϵ : le rendement de détection,
- t : la durée d'acquisition (s),
- $\Gamma(E_i)$: la probabilité d'émission de la raie alpha d'énergie (E_i).

En comptage total alpha, pour le calcul de $S(E_i)$, il faut déterminer quel est le nombre de canaux sur lequel intégrer le signal. Cette donnée influe directement sur la valeur de rendement de détection. La figure 2.5.8 montre, dans le cas d'un PIPS plongé dans de l'eau, quelle serait la coupure en énergie la plus intéressante (minimisation du rapport bruit/signal). Cette figure indique que l'intégration optimale, pour le comptage alpha total et pour une mesure en ligne dans l'eau, est comprise entre 3000 et 6000 keV.

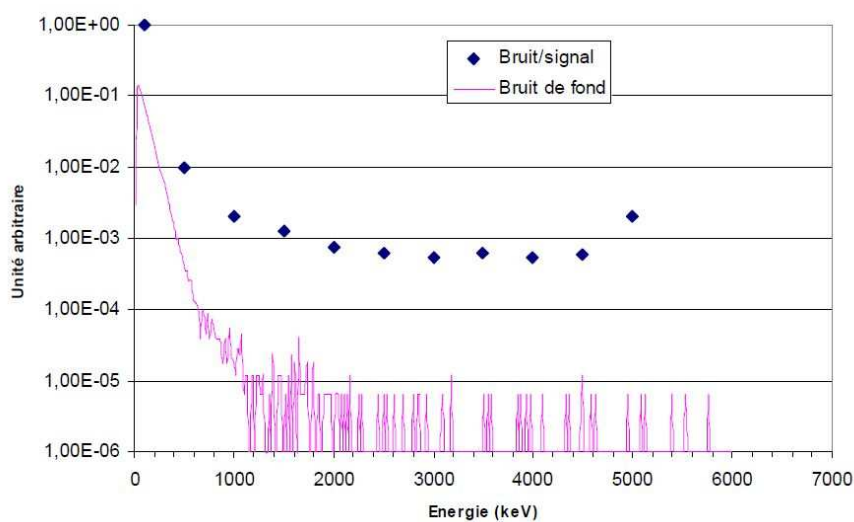


FIGURE 2.5.8: Évolution du rapport bruit/signal en fonction de l'énergie. Les données sont relatives à la mesure de bruit de fond dans l'eau avec un capteur PIPS

Toujours dans le cas du comptage total des particules alpha (immersion du détecteur dans la solution), le signal enregistré lors de l'acquisition provient aussi bien des particules alpha les moins énergétiques émis par l'uranium que celles les plus énergétiques émises par l'américium. Or, dans ce type de comptage, il est impossible de différencier un alpha émis par l'uranium d'un alpha émis par l'américium. Ceci engendre donc une incertitude sur le rendement déterminé par simulation numérique. L'incertitude maximale due à cette méconnaissance est de 30% et elle intègre le fait qu'aucune information a priori n'est connue sur les radionucléides émetteurs alpha présents dans la cuve. Or ceci est rarement le cas pour les effluents de Valduc car cette information est connue en fonction de l'origine de l'effluent. De plus, si une mesure spectrométrique est mise en œuvre alors cette information sera connue et l'incertitude associée minimisée.

A partir de ces études, qui ont démontré la faisabilité de la mesure non destructive alpha, il est possible d'établir le schéma de principe d'un tel dispositif de mesure alpha non destructif. Ce schéma est présenté sur la figure 2.5.9.

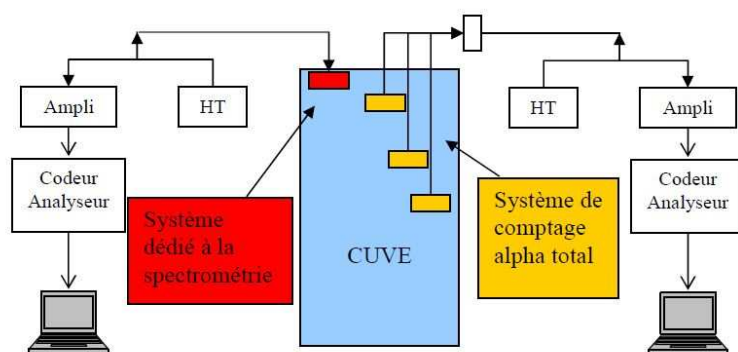


FIGURE 2.5.9: Schéma de principe de mesure et de spectrométrie de l'activité alpha in situ

Chapitre 3

Activités d'animation et d'encadrement de la recherche

3.1 Travaux encadrés

3.1.1 Thèses et postdoctorat

Thèses

Thomas VIGINEIX

« Exploitation des spectres gamma par méthode non paramétrique et indépendante d'a priori formulés par l'opérateur »

La spectrométrie gamma est une des mesures non destructives passives la plus utilisée pour la quantification des radionucléides dans les déchets nucléaires. Le travail de thèse a pour but l'amélioration de l'exploitation du spectre gamma (c'est-à-dire après l'étape d'acquisition du spectre). L'exploitation des spectres se faisant en deux étapes (restituer les énergies et les surfaces nettes des pics contenus dans le spectre et déterminer le rendement de détection de la mesure), le travail de thèse s'est divisé en deux parties. Dans un premier temps, nous avons mis en place un procédé de validation qui quantifie les incertitudes engendrées par l'extraction des énergies et des surfaces et qui est applicable à n'importe quel logiciel de déconvolution. Avec ce procédé, nous avons étudié les performances de la déconvolution effectuée par le logiciel SINBAD. Le travail de thèse a ainsi permis de disposer d'un outil automatisé d'extraction des énergies et des surfaces nettes des pics d'absorption validé et dont les incertitudes sont quantifiées. Enfin, la deuxième partie de la thèse a permis de définir une méthode automatisée de calcul du rendement de détection, applicable à n'importe quel objet mesuré. La faisabilité de la méthode sur des cas simples a été attestée par le travail de thèse. L'extrapolation à des cas

plus complexes devra faire l'objet d'études supplémentaires.

Nicolas GUILLOT

« Quantification automatisée par spectrométrie gamma passive des activités radiologiques et de leurs incertitudes associées contaminant des objets complexes de grands volumes »

Le but de ce doctorat est de réaliser la quantification des activités radiologiques présentes dans des objets complexes de grands volumes (de type boîte à gants avec leur procédé) sans formulation et ajustement, par l'opérateur, d'a priori difficiles à estimer. L'application majeure de la spectrométrie gamma est l'identification et la quantification de radionucléides dans tout type d'objet. La quantification précise des actinides présents dans les déchets et les procédés nucléaires doivent répondre aux exigences réglementaires et sont contrôlées par les autorités de sûreté nucléaires. Pour répondre à ce besoin, le LMNE :

- a développé une méthode de caractérisation de diodes GeHP associée à un code de calcul de transport de particules robuste et doit maintenant, au travers de cette thèse :
 - l'intégrer au processus global de mesure,
 - établir le modèle permettant de quantifier les incertitudes associée à ces caractérisation,
- a développé une méthode automatisée de traitement des spectres gamma garantissant les aires nettes extraites et leurs incertitudes associées,
- doit développer et valider une méthode de détermination passive, automatisée, sans a priori formulés par l'opérateur, du coefficient d'étalonnage, ajustée à chaque objet à caractériser. Cette étude fait aussi partie du cadre de cette thèse.

Le travail de thèse a pour objectif la définition, finalisation ou la validation des méthodologies décrites ci-dessus afin que les opérateurs mesures disposent d'une méthode d'exploitation automatisée et robuste permettant de s'affranchir des modélisations numériques classiquement effectuées et de toutes les hypothèses formulées a priori sur les caractéristiques du déchet mesuré (matériaux en présence, formes géométriques, épaisseurs, ...), souvent inaccessibles. Une telle méthode permettrait de réduire fortement le temps d'exploitation du spectre (jusqu'à 90%) et serait facilement déployée pour l'analyse d'autres types de spectrogrammes. Pour la première fois, un outil complet (comprenant l'étalonnage du détecteur, le traitement des spectres, la quantification des activités et des incertitudes), automatisée, validé sera disponible pour cette quantification.

Postdoctorat**Jérôme ROCCA**

« Définition, réalisation et validation d'un banc métrologique pour l'étalonnage numérique de tout type de diode germanium »

Suite à la réception d'une diode germanium GeHP planaire non conforme après vérification sur site par le laboratoire et non reconnue comme telle par le fournisseur, le laboratoire a décidé de s'approprier la maîtrise de cette méthodologie d'étalonnage. En effet, la diode incriminée n'a pu être mise en service pendant plus d'un an, durée pendant laquelle le fournisseur n'a pas voulu reconnaître la non conformité. Cette étude a donc porté sur l'état de l'art existant sur la méthode, l'inventaire exhaustif de tous les phénomènes physiques intervenant dans le fonctionnement de la diode (lignes de champs électromagnétiques, collection de charge, électronique de mise en forme, fonctionnement général d'une diode, dopant, migration du dopant,...), la réalisation d'un premier banc métrologique pour la caractérisation et la recette des diodes et la définition d'une méthode de caractérisation adaptée au besoin de notre laboratoire en termes de configuration de mesures et de complexité d'objet à caractériser.

3.1.2 Diplôme de recherche technologique, stages**Diplôme de Recherche Technologique****Julien Simonato**

« Détermination de l'efficacité intrinsèque d'un détecteur GeHP appliquée aux mesures sur déchets nucléaires »

Notre laboratoire cherche en permanence à maîtriser sa métrologie et la justesse de ses essais afin de notamment réduire les incertitudes associées. Ce DRT s'articule précisément sur la maîtrise de la réponse spatiale du détecteur, celle-ci étant directement liée à son étalonnage. Les mesures par spectrométrie gamma sont effectuées avec des diodes en germanium hyper pur (GeHP). Pour remonter à la quantité de matière présente dans l'objet mesuré, il est nécessaire de connaître l'efficacité de détection de la diode. Cependant cette efficacité de détection est spécifique aux géométries de chaque scène de mesure. Si pour des configurations simples, elle peut être déterminée par mesure directe sur source étalon, cela n'est pas réalisable pour les géométries complexes auxquelles sont régulièrement confrontées les équipes de mesure, notamment lors des mesures de rétention en boîte à gants. Dans ces configurations, il est primordial de garantir la maîtrise de la réponse du détecteur (notion d'efficacité de détection) afin de :

- rendre le résultat d'essais le plus juste possible, c'est-à-dire le plus proche possible de la valeur recherchée,
- estimer l'incertitude associée encadrant de façon cohérente la valeur recherchée (reproductibilité).

L'efficacité de détection est dépendante des différents enchevêtrements d'écrans de matériaux présents entre la source et le détecteur. En routine elle est déterminée par code de calcul de transport de photons gamma permettant notamment la modélisation de la scène de mesure. Ces codes de calcul font appel à un fichier de caractérisation donnant la réponse spatiale, angulaire et azimutale, du capteur germanium. Dans ce contexte l'initiative a été prise de mettre au point un outil de caractérisation de détecteur, c'est-à-dire d'être autonome, pour chaque appareil, vis-à-vis de la détermination de l'efficacité de détection. Cet outil de caractérisation devra répondre à plusieurs critères. Il doit :

- pouvoir s'adapter à tous types de détecteur,
- s'appuyer sur des mesures expérimentales,
- être simple d'utilisation.

Ce stage de DRT a permis de mettre au point et de valider cet outil.

Licence professionnelle

Claire BOUCHENOT

« Diagnostic de l'électronique des chaînes de mesure. Mise en route et assistance des chaînes « détrompeurs matière »

L'objectif de ce travail est de permettre au personnel du laboratoire de diagnostiquer plus facilement les pannes qui peuvent survenir sur les différentes chaînes de mesure. La laboratoire est responsable du suivi et du bon fonctionnement du matériel de plusieurs services. Lorsqu'un service constate un problème sur une chaîne de mesures, il en avise le laboratoire qui est chargé de diagnostiquer et de résoudre ce problème. Jusqu'à présent le diagnostic des pannes consistait à remplacer un élément de la chaîne par un matériel neuf. Le matériel jugé défectueux était alors renvoyé en réparation. Pour réaliser ces diagnostics, le laboratoire a investi dans un oscilloscope et un générateur de signaux. La première partie du travail consiste à :

- étudier le fonctionnement des différents éléments composants les chaînes de mesure gamma et neutron passif,
- établir des protocoles décrivant des tests simples pour vérifier le bon fonctionnement des chaînes de mesure. Ces protocoles devront être utilisables par tous, d'autant plus que le personnel du laboratoire n'a pas de formation dans le domaine de l'électronique.

La seconde partie du travail a porté sur le paramétrage et la mise en service

des détrompeurs «matière». Sur le centre, Il y a une quinzaine de « détrompeurs matière » qui sont indispensables pour le bon déroulement des déplacements « matière » sur le centre de Valduc. Ils doivent être continuellement opérationnels. Ces chaînes et le logiciel associé ont évolué dans le temps. Ancienne et nouvelle versions se côtoient. Ce travail a permis d'établir un protocole permettant à toutes les personnes du laboratoire de configurer et de mettre en service l'ensemble de la chaîne constituant un détrompeur matière.

Stage master 1

Christophe CHARLETTE

« Modélisation avec le code MCNP de l'influence de la répartition du bore dans une plaque borée »

Les simulations réalisées dans cette étude modélisent la machine de contrôle de la teneur en bore par méthode neutronique, implantée à TECHNICATOME Cadarache (AREVA TA). Cette machine automatisée sert à contrôler la teneur en bore 10 de plaques au cours de leur processus de fabrication. L'étalonnage de ce dispositif, effectué expérimentalement, a mis en évidence des écarts entre les pentes d'étalonnage obtenues avec des plaques de production « standard » (de teneur en bore déterminée par analyse sur échantillons) et celles obtenues avec des plaques étalons élaborées pour le besoin de l'étalonnage. Contrairement aux plaques de production, pour lesquelles le bore est présent sous forme d'inclusions dans la masse, les plaques étalons ont été réalisées sous forme de dépôt surfacique d'un substrat boré. L'objectif de la présente étude était de justifier les constatations faites lors des étalonnages expérimentaux. Les résultats obtenus dans les calculs effectués ont permis d'en valider certaines de façon qualitative : linéarité de la réponse en fonction de la teneur en bore, effets liés à l'hétérogénéité de répartition du bore sur la largeur et l'épaisseur de la plaque. Par contre, ces résultats n'ont pas permis de statuer sur la validation en absolu des résultats obtenus lors des étalonnages expérimentaux.

Loïc LOPEZ

« Étude de la faisabilité de la localisation de la matière fissile présente dans les poubelles à caractériser à l'aide du système de mesures PACCMAN »

Ce stage s'est déroulé au sein du Laboratoire de Mesure Nucléaire (LMN) dont un des besoin est de pouvoir localiser de la matière nucléaire dans une poubelle de déchets radioactifs. Pour cela, le laboratoire, a défini un système de mesure nommé PACCMAN dont le but est de quantifier les masses de matières fissiles présentes à l'intérieur d'une poubelle de déchets sans toutefois les localiser. La technique de quantification utilisée est l'Interrogation Neutronique Active. La localisation

sera effectuée par reconstruction tomographique à partir des mesures du système PCCMAN. L'étude de faisabilité ainsi que l'estimation des performances sont réalisées par modélisation Monte-Carlo à l'aide du code de calcul 3D de transport de particules MCNP.

Mathieu Mayer

« Validation de l'exploitation des spectres gamma par déconvolution non paramétrique »

SINBAD est un logiciel de traitement de spectres de rayonnements γ . Il est développé par le CEA Saclay et n'a jusqu'alors jamais fait l'objet d'une validation pour la mesure de déchets par spectrométrie γ . L'objectif du stage est de réaliser la validation de SINBAD dans le cadre de l'utilisation qui lui est prévue au sein du laboratoire. Ce protocole a permis de définir un domaine d'étude dans lequel l'efficacité du logiciel est garantie.

Stage master 2

Romain Coulon

« Mesure en ligne par spectrométrie de l'activité alpha contenue dans les cuves d'effluents »

Une des missions pérennes du Laboratoire Mesure de Déchets et Expertise (LMDE) du centre d'études nucléaires de Valduc est de déterminer l'activité alpha contenue dans les effluents produits par le centre. Cette détermination est effectuée par spectrométrie alpha suite à une prise d'échantillon de l'effluent à caractériser. L'étude proposée dans ce rapport porte sur la mise en œuvre d'un dispositif de mesure en ligne alpha directement dans les effluents. Au terme de cette étude, un dispositif et une méthodologie viable de mesure alpha en ligne ont été mis au point et testés. Grâce à ce nouveau dispositif, la répartition de l'activité alpha sur l'ensemble des cuves d'effluent peut maintenant être prise en compte. Toutefois, des études complémentaires sur les détecteurs, l'électronique, la mécanique et l'implantation du système de mesures sont encore à mener avant de disposer d'un dispositif industriel opérationnel.

Thomas Vigineix

« Mise en service d'une méthode de correction par transmission neutronique du coefficient d'étalonnage pour les mesures neutroniques passives et développement d'une technique innovante de quantification du tritium par transmission neutronique »

L'unité d'accueil du stage a pour mission la caractérisation des déchets nucléaires produits par le centre ainsi que l'amélioration et le développement de ces moyens

de caractérisation. Dans ce cadre, elle a recours à différentes techniques de mesures, en particulier la mesure neutronique passive.

Le but de la première partie du stage est de mettre en place une méthode de transmission neutronique qui rendrait les mesures actuellement menées plus robustes et plus simples à effectuer. Elle servirait directement aux opérateurs qui effectuent les mesures.

Le second objectif du stage est d'étudier le développement d'une technique innovante de caractérisation de déchets contenant du tritium, basée sur la transmission neutronique. Cette partie servira de base pour une éventuelle application industrielle.

Julien Simonato

« Mise en œuvre et validation expérimentale de méthodologies de traitements neutroniques sur instrumentation numérique »

La mesure neutronique passive par coïncidence se sert des neutrons émis par fissions spontanées par les isotopes pairs des actinides présents dans les objets à caractériser. Les chaînes de mesure que gère actuellement le LMDE nécessitent un étalonnage long figeant les mesures à un domaine de validité précis. Cette méthodologie fonctionne parfaitement pour une utilisation en routine et lorsque les objets à caractériser possèdent les mêmes caractéristiques physico-chimique. Ce manque de souplesse devient très problématique en cas d'expertise d'objets sortants du cadre habituel. Afin de combler ce manque le LMDE a investi dans une électronique d'expertise, nommée « Medas2 », qui a pour vocation de recueillir et d'enregistrer numériquement les trains d'impulsions émises par le poste de mesure neutronique passive. Les possibilités attendues sont :

- de pouvoir réaliser une expertise sans avoir à modifier les paramètres du poste de mesure,
- de faciliter et d'affiner le paramétrage de l'électronique,
- d'optimiser a priori les paramètres d'analyse des coïncidences, comme le pré-retard et la largeur de la fenêtres des coïncidences réelles,
- le diagnostic en ligne des éventuelles pannes et faciliter la maintenance corrective associée.

Ce stage a permis de mettre en œuvre et de valider :

- la chaîne de mesure expertise afin qu'elle puisse venir se brancher directement sur n'importe quel poste de mesure neutronique passive existant sur le site de Valduc,
- les logiciels de traitements des acquisitions numériques réalisées par l'électronique,
- les méthodologies de quantification de masse de matière,

- les modélisations numériques indispensables pour un fonctionnement en mode expertise.

Nicolas Guillot

« Étude de faisabilité d'un traitement automatisé des spectres gamma indépendant d'a priori formulés par l'opérateur »

L'objectif est le traitement automatisé des spectres gamma pour l'extraction des données brutes (surfaces et énergies) ainsi que l'obtention automatisée du rendement de détection. La première partie du stage (relative à l'extraction des données du spectre) a été de finaliser la validation de SINBAD. Cela a consisté à déterminer le domaine de validité de la déconvolution des spectres de rayonnements gamma par le logiciel SINBAD et à en automatiser le traitement. Ce domaine de validité permet de garantir que les informations extraites des pics respectent les critères de validité. La seconde partie du stage, relative au calcul du rendement de détection, a consisté à poser les bases d'une nouvelle méthode pour l'obtention du rendement de détection et à en étudier la faisabilité pour une application automatisée. Les objets à caractériser étant très difficile à modéliser, le rendement de détection ne peut être qu'estimé. Dans notre méthode, l'estimation est effectuée à l'aide de simulations numériques itératives de géométries dites « équivalentes » à la géométrie réelle de l'objet. Les géométries équivalentes possèdent le même comportement photonique que la géométrie réelle de l'objet. La faisabilité de l'automatisation de la méthode itérative qui détermine la géométrie équivalente a été vérifiée sur deux cas tests avec succès.

Master 2 par alternance

Sophie M'Quiby

« Système de management qualité. Norme ISO 17025 : Optimisation de la performance Management des risques »

Le laboratoire est spécialisé dans la caractérisation et l'expertise des déchets nucléaires. Son système de management de la qualité a été mis en place selon la norme ISO 17025 « Exigences générales concernant la compétence des laboratoires d'étalonnages et d'essais ». Aujourd'hui, l'objectif est d'assurer la pérennité de ses activités et d'optimiser la performance de son système de management.

Les objectifs du stage sont regroupés selon les grands axes suivants :

- soutien à la démarche d'accréditation COFRAC,
- maintenir le système de management de la qualité, notamment par le management des risques et par l'optimisation des performances de l'unité d'accueil,
- alimenter le processus d'amélioration continue du laboratoire sur l'efficience de son système de management qualité et métrologie,

- améliorer la communication sur l'accréditation et les activités du laboratoire.

Ingénieurs étrangers

M. Liu Shixue et M. Yang Li Jun

Encadrement de deux ingénieurs du China Institute of Atomic Energy

« Simulation numérique en ligne du taux de comptage neutronique de SMOPY pour le contrôle du taux de combustion des assemblages combustibles usés »

Étude faite dans le cadre d'une convention entre le CEA Cadarache et l'AIEA. Détermination du crédit burn-up par code de calcul MCNP et CESAR et validation par rapport au retour d'expérience de l'usine de retraitement de La Hague. L'appareil de mesure SMOPY a été défini dans le cadre d'une réponse à appel d'offre de la part de l'AIEA dans le domaine des inspections réalisées par l'AIEA auprès des installations nucléaires. La composante neutronique du système a pour vocation la détermination du taux de combustion des assemblages combustibles usés placés en piscine de refroidissement.

3.2 Brevets

Auteur, Système in situ de mesure directe du rayonnement alpha et procédé associé pour la quantification de l'activité des radionucléides émetteurs alpha en solution, FR2965937, 2012

Co-auteur, Dispositif de mesure de grandeurs physiques de matières nucléaires et procédé de mise en œuvre d'un tel dispositif, FR2943537, 2010

Co-auteur, Dispositif de mesure de taux de comptage et dispositif d'étalonnage de chambre à fission associé, FR2925700, 2009

3.3 Publications

3.3.1 Notes techniques internes CEA

Auteur Principal

Manuel qualité du laboratoire Mesures Nucléaires et Expertises ; SYM DORX0 X BM MM 00008193 ; 2011

Dossier de sûreté : nouvelle chaîne de mesure neutrons et gamma de la salle de casse du bâtiment 124 ; SYM SPX01 X GR INQ 00005108 ; 2007

Dossier de sûreté du système de mesure des fûts de déchets par neutrons passifs au bâtiment 123 ; SYM MDX01 X GR INQ 00001371 ; 2009

Descriptif d'évaluation d'activité des caissons 5 m^3 issus de la cellule de démantèlement - colis 7H ; ENV MDX01 X GR INQ 00007621 ; 2011

Descriptif d'Évaluation d'activité - colis de déchets 2A ; ENV MDX01 X GR INQ 00007871 ; 2011

Descriptif d'Évaluation d'Activité - Colis de déchets 5X ; ENV MDX01 X BM INQ 00007867 ; 2012

Incertitude liée à une mesure par spectrométrie gamma ; SYM.S08.11.X.GR.NT.Q.SAD.1192 ; 2008

Étalonnage de postes de mesures par comptage neutronique passif ; SYM MDX01 X GR MOP 00001397 ; 2009

Étalonnage du système de mesure par neutrons passifs VVO du bâtiment 123 ; SYM.S08.11.X.GR.MOP.E.SAD.2102 ; 2009

Exploitation du système de mesure neutronique passif VVO pour les fûts de déchets de 100 et 200 litres ; ENV MDX01 X GR INQ 00006714 ; 2011

Dossier de contrôle de performances de l'appareil de mesure VVO ; SYM MDX01 X GR INQ 00001097 ; 2011

Étalonnage du système d'expertise MADAGASCAR pour la mesure de l'activité des fûts de déchets 100 et 200 litres par correction de l'atténuation de la matrice ; SYM.S08.11.X.GR.MOP.E.SAD.2103 ; 2009

Exploitation du système de mesure MADAGASCAR ; ENV MDX01 X BM INQ 00008370 ; 2012

Dossier de contrôle des performances du système de mesure MADAGASCAR ; ENR-2011-000137 ; 2012

Définition et validation par simulations du dispositif CELINA intégré dans la cellule de mesure PROMETHEE 6 ; NT SCCD 2003-024 ; 2003

Étalonnage et détermination des incertitudes du système de comptage neutronique passif par coïncidence de la cellule n°6 du LEFCA ; DEN/DTN/SMTM/LMN 2004-112 ; 2004

Analyse du poste de mesure neutronique du MCMF pour l'amélioration des incertitudes de mesures ; DTN/SMTM/LMN-04/020 ; 2004

Dimensionnement/conception du dispositif de mesure par interrogation neutronique active PACCMAN ; DEN/DTN/SMTM/LMN 2004-70 ; 2004

Étude des performances obtenues avec la méthodologie RECIF au poste 1 de l'usine de La Hague ; DEN/DTN/SMTM/LMN 2005-99 ; 2005

Impact sur le rendement de détection et contribution au bruit de fond des différents éléments de la salle de casse ; DEN/DTN/SMTM/LMN 2005-19 ; 2005

Définition et spécifications du poste de mesure neutronique passive par coïncidence de la salle de casse ; DEN/DTN/SMTM/LMN 2004-89 ; 2004

Mise en œuvre de la spectrométrie gamma pour l'action « reconditionnement des cendres » de Marcoule ; SYM MDX01 X GR MOP 00001448 ; 2009

Évaluation des incertitudes et expression des résultats arrondis ; SYM MDX01 X GR PRO 00001442 ; 2011

Détermination de l'activité de sources d'émission neutronique ; SYM SSX02 X GR MOP 00006162 ; 2007

Co-auteur

Dossier de contrôle des performances de la mesure par spectrométrie gamma associée au logiciel ISOCS ; ENR-2011-000138 ; 2012

Exploitation du système de mesure neutronique passif VVO associé à la carte d'acquisition MeDas2 et au logiciel d'analyse AMeN 7.1 ; ENV MDX01 X BM INQ 00008039 ; 2012

Utilisation du système de mesure par spectrométrie gamma pour les mesures de fûts uraniés tritiés dans l'installation individuelle 026 ; ENV MDX01 X BM INQ 00008191 ; 2012

Formation et Qualification du personnel au SMNC/LMNE ; SYM HRHX0 X BM PRO 00006741 ; 2011

Mesure d'activité par spectrométrie alpha sur dépôt direct ; SYM MDX01 X GR INQ 00001090 ; 2011

Vérification d'une chaîne de mesure de spectrométrie alpha ; SYM MDX01 X GR INQ 00001100 ; 2011

Mesure par spectrométrie gamma au laboratoire 80 ; SYM MDX01 X GR INQ 00001099 ; 2011

Exploitation du système de mesure Nal pour l'estimation de la masse de plutonium ou d'uranium contenue dans les fûts « vrac » ; SYM MDX01 X GR INQ 00001387 ; 2012

Exploitation du système de mesure par neutrons passifs pour la détermination de la masse de plutonium dans les paniers de déchets issus de la salle de casse ; SYM MDX01 X GR INQ 00001391 ; 2009

Exploitation des chaînes de mesures NaI et GeHP de TRIRAD ; SYM MDX01 X GR INQ 00001430 ; 2009

Rapport de mesures nucléaires ; SYM MDX01 X GR INQ 00001446 ; 2010

Étalonnage des détrompeur 239PU et 235U ; SYM MDX01 X GR MOP 00001056 ; 2010

Étalonnage et vérification des détecteurs de spectrométrie gamma GeHP du LMDE ; SYM MDX01 X GR MOP 00001088 ; 2011

Étalonnage du système de mesure par neutrons passifs de la salle de casse du bâtiment 124 ; SYM MDX01 X GR MOP 00001398 ; 2011

Spectrométrie gamma et conditions expérimentales ; SYM MDX01 X GR MOP 00001435 ; 2010

Mode opératoire : calcul de l'efficacité expérimentale par l'utilisation de sources étalon ; SYM MDX01 X GR MOP 00001436 ; 2010

Mode opératoire : Détermination de l'isotopie plutonium à partir d'un spectre gamma ; SYM MDX01 X GR MOP 00001437 ; 2009

Évaluation de l'activité d'objets, de fûts et d'échantillons par spectrométrie gamma ; SYM MDX01 X GR PRO 00001091 ; 2010

3.3.2 Publications

Revues internationales avec comité de lecture

Experimental and simulated assay of actinides in a real waste package, Auteurs : Saurel, N. ; Capdevila, J.M. ; Huot, N. ; Gmar, M. source : Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, v 550, n°3, p 691-699, September 21, 2005 Editeur : Elsevier

Improve Transuranian Wastes Measurements by Non-Destructive Passive Neutron Assay Using a Matrix Correction Method by Neutron Transmission, Auteurs : T. Vigineix, N. Saurel, source : IEEE transactions on nuclear science, vol. 58, n°. 4, august 2011

Conférences internationales avec actes

Instrumental photon activation and applications in a nuclear-waste inspection purpose, Auteurs : Jeanneau, F. ; Gmar, M. ; Huot, N. ; Payan, E. ; Lainé, F. ; Pillot, Ph. ; Lyoussi, A. ; Roux, L. ; Saurel, N. ; Source : Proceedings of the 9th International Conference on Environmental Remediation and Radioactive Waste Management, ICEM 2003 : Volume 3 Conference : 9th International Conference on Environmental Remediation and Radioactive Waste Management, September 21,2003-September 25,2003 ; Editeur : American Society of Mechanical Engineers
Burn-up measurements coupling gamma spectrometry and neutron measurement ; Auteurs : Toubon, H. ; Pin, P. ; Lebrun, A. ; Oriol, L. ; Saurel, N. ; Gain, T. ; Conference : ENC 2005 : European nuclear conference. Nuclear power for the 21. century : from basic research to high-tech industry Versailles (France) December 11-14 2005 ; Editeur : Societe Francaise d'Energie Nucleaire (SFEN)

Characterization system for germanium detectors and other developments for gamma spectroscopy applied to nuclear waste characterization ; Auteurs : J. Roccaz, M. Juillard, N. Saurel, Conference : 2008 IEEE Nuclear Science Symposium Conference Record, October 15,2008 - October 25,2008

Transuranian wastes measurement by nondestructive passive neutron assay using a matrix correction method by neutron transmission ; Auteurs : Thomas Vigineix, Nicolas Saurel, Gaëlle Hergault and Gilles Ban, Conference : ANIMMA Interna-

tional Conference, June 7-10 2009, Marseille, France, Editeur : Institute of Electrical and Electronics Engineers Inc.

GAMPIX : a new gamma imaging system for radiological safety and Homeland security purposes ; Auteurs : F. Carrel, R. Abou Khalil, S. Colas, D. De Toro, G. Ferrand, E. Gaillard-Lecanu, M. Gmar, D. Hameau, S. Jahan, F. Lainé, A-S. Lalleman, F. Lemasle, C. Mahé, N. Menaa, S. Normand, N. Saurel, V. Schoepff, H. Toubon, IEEE/NSS/MIC/RTSD Conference, October 23–29 2011, Valencia

GAMPIX : a new generation of gamma camera for hot spot localisation, F. Carrel, R. Abou Khalil, P. Blot, S. Colas, M. Gmar, F. Lemasle, N. Saurel, V. Schoepff, H. Toubon, ISOE Conference, November 17–19 2010, Cambridge

3.3.3 Posters

« MADAGASCAR » : An automatic non destructive assay device for waste drums ; Auteurs : G. Rousseau, N. Saurel, L. Dujardin, Conference : ESARDA, 29th Annual Meeting, Symposium on Safeguards and Nuclear Material Management, May 22-24 2007

Twenty years of Hold-up : A way to enrich the safeguards concept ; Auteurs : L. Dujardin, C. Portella, N. Saurel ; Conference : ESARDA, 29th Annual Meeting, Symposium on Safeguards and Nuclear Material Management, May 22-24 2007

The complete dismantling of the glove boxes in the Valduc facility ; Auteurs : N. Saurel, L. Dujardin, G. Rousseau, Conference : ESARDA, 29th Annual Meeting, Symposium on Safeguards and Nuclear Material Management, 22-24 May 2007

An overview of waste nuclear measurements in the atomic energy commission facility of Valduc ; Auteurs : C. Portella, N. Saurel, L. Dujardin, Conference : ESARDA, 29th Annual Meeting, Symposium on Safeguards and Nuclear Material Management, May 22-24 2007

Characterization system for germanium detectors and other developments for gamma spectroscopy applied to nuclear waste ; Auteurs : J. Roccaz, M. Juillard, N. Saurel, Conference : 2008 IEEE Nuclear Science Symposium Conference Record, October 15,2008 - October 25,2008

Characterization system for germanium detectors dedicated to gamma spectroscopy applied to nuclear waste ; Auteurs : J. Roccaz, C. Portella, N. Saurel, Conference : ANIMMA International Conference, June 7-10 2009, Marseille, France

Transuranian wastes measurement by nondestructive passive neutron assay using a matrix correction method by neutron transmission ; Auteurs : Thomas Vigineix, Nicolas Saurel, Gaëlle Hergault and Gilles Ban, Conference : ANIMMA International Conference, June 7-10 2009, Marseille, France

LORINE : Neutron Emission LOcatoR by SOI detectors ; Auteurs : H. Hamrita, V. Kondrasovs, JM Bourbotte, N. Saurel, S. Normand, Conference : ANIMMA International Conference, June 7-10 2009, Marseille, France

Mastering uncertainties in the quantification of radionuclides by gamma spectrometry; Auteurs : T. Vigineix, N. Saurel, G. Ban, Conference : INMM 52nd annual meeting, july 17-21 2011, Palm Desert, USA

3.3.4 Activités de comité de lecture

J'ai réalisé l'arbitrage d'articles pour la revue Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A

3.4 Expertises scientifiques

3.4.1 Groupe de travail « suivi matière »

Le Haut-commissaire à l'énergie atomique a décidé de constituer un groupe de travail chargé de rechercher les voies de progrès raisonnablement envisageables dans les pratiques de suivi et de comptabilisation des matières nucléaires. Ce groupe pluridisciplinaire impliquant les différentes directions du CEA (DAM, DEN, DRT et DSM) a été mandaté le 23 novembre 2009, avec, dans un premier temps, l'objectif de se limiter aux installations traitant de matières fissiles par « voie sèche ». Il s'agit de lancer une réflexion constructive sur les meilleurs moyens de traiter ce type de problème. L'effort de compréhension et d'analyse s'est porté sur :

- les pratiques de suivi des matières, en considérant des cas précis d'installations traitant du plutonium,
- les possibilités des techniques de mesures passives du plutonium.

Je suis membre de ce groupe de travail, composé de 10 personnes.

3.4.2 Groupe de normalisation AFNOR

Je suis expert auprès du Bureau de Normalisation d'Equipements Nucléaires (BNEN) dans la commission M60-2. Je participe activement au Groupe de Travail Français n°5 (GTF 5) : Gestion et caractérisation des déchets radioactifs. Cette participation porte sur :

- l'animation et le pilotage de l'équipe en charge de la révision des normes NF M60 306 et M60 315, traitant de la mesure de matière fissile par comptage neutronique passif, et de la rédaction du projet de norme découlant de cette révision,
- mon retour d'expérience en spectrométrie gamma et la relecture du projet de norme « Guide for gamma ray Spectrometry Measurement of Radioactive Waste Packages », proposé au vote conjoint New WIP/CD pour remplacer la

norme ISO 14850-1, traitant de la mesure par spectrométrie gamma de colis de déchets nucléaires,

- mon retour d'expérience en métrologie des rayonnements pour les différentes révisions et projets de normes portés par ce groupe de travail.

3.4.3 Groupe de travail CETAMA

La Commission d'ETAbblissement des Méthodes d'Analyse (CETAMA) a pour mission de mener des actions visant à l'amélioration de la qualité des résultats des mesures et analyses. Elle propose des développements scientifiques et techniques appropriés, en assurant :

- l'organisation et l'interprétation de circuits interlaboratoires,
- la réalisation, la certification et la commercialisation de matériaux de référence,
- la rédaction de méthodes, de projets de normes et de documents techniques,
- la valorisation du retour d'expérience, la diffusion des informations scientifiques et un rôle d'expertise.

La CETAMA a constitué un « réseau de compétences » organisé en Groupes de Travail (GT) qui mettent en commun leurs connaissances et leurs retours d'expérience. Ces GT sont des lieux d'échanges d'informations entre les laboratoires, sur les méthodes et les techniques analytiques. Le but des GT est de favoriser le retour d'expérience et la mise en commun des informations, proposer et rédiger des méthodes analytiques, proposer des actions pour améliorer la qualité des résultats.

Je participe au groupe de travail n° 27 (GT 27), « Contrôle non-destructif appliqué aux déchets et au déclassé ».

Ma participation au sein de ce GT consiste à :

- proposer et rédiger les chapitres des Dossiers de Recommandations et d'Optimisation (DROP). Ces dossiers sont des documents techniques de référence. Ils ont pour but de guider l'utilisateur dans le choix des matériels et l'optimisation des réglages, de l'aider pour la mise en œuvre des mesures et enfin de définir les références documentaires et normatives. J'ai participé, participe et contribue aux dossiers DROP sur la mesure des colis de déchets par spectrométrie gamma et DROP sur la caractérisation des colis de déchets par comptage neutronique passif,
- réaliser les présentations techniques sur les thématiques proposées par le GT 27,
- proposer des sujets de travail au groupe

3.5 Administration de la recherche

3.5.1 Animation du laboratoire de Mesures Nucléaires et Expertises

J'ai la responsabilité du laboratoire de mesures nucléaires du centre de Valduc. Ce laboratoire a en charge :

- toutes les caractérisations radiologiques des effluents et colis de déchets solides de faible et de moyenne activité produits par les activités industrielles du centre de Valduc,
- les mesures de rétention dans les boîtes à gants, avant mise en actif des procédés, pendant l'exploitation des procédés, après assainissement et avant évacuation vers la salle de casse où les boîtes à gants sont démantelées,
- la dosimétrie auprès des réacteurs nucléaires PROSPERO et CALIBAN et de l'accélérateur SAMES,
- la définition, le dimensionnement, la mise en œuvre et la qualification des moyens expérimentaux et des méthodologies d'analyses associés à ces problématiques.

Pour répondre à ces besoins, le laboratoire dispose et met en œuvre :

- les capteurs suivants :
 - spectromètres gamma germanium, NaI et LaBr₃,
 - compteurs neutronique de type hélium 3, chambres à fissions,
 - spectromètres alpha de type chambre à grille,
 - compteur bêta,
 - calorimètres,
 - chambre d'ionisation pour la mesure par thermoluminescence,
 - gamma caméra,
- les électroniques suivantes :
 - carte électronique de datation,
 - amplificateurs de courant et de charges,
 - électroniques analogiques de type Multi Channel Analyser,
- les méthodologies de mesures :
 - thermoluminescence,
 - mesure de dose intégrée par mesure de la tension des diodes,
 - détermination d'activité massique et de fluence neutronique par cible d'activation,
 - mesure d'isotopie par spectrométrie gamma,
 - validation et estimation des incertitudes des méthodes de mesures par plan d'expériences,
 - identification et quantification d'activité par spectrométrie gamma par code

- de calcul Monte-Carlo, par méthode de l'extrapolation à l'énergie infinie,
- quantification des masses de matière par comptage neutronique passif des coïncidences et des multiplicités, par évaluation de la courbe rossi-alpha,
- caractérisation, c'est à dire l'évaluation de l'efficacité intrinsèque, de diodes germanium et détermination de sa réponse spatiale, pour mise en œuvre de la quantification par code de calcul,
- correction de matrice des mesures neutroniques et gamma par source de transmission.

La pluralité des périmètres de mesures couvert par le laboratoire, le fait qu'il mette en œuvre lui-même les moyens de mesure et les méthodes de mesures correspondants, qu'il assure le suivi métrologique de ses appareils induisent une rigueur métrologique permettant d'assurer que le moyen expérimental mis en œuvre répond correctement au cahier des charges. Il en va de la crédibilité du laboratoire.

Afin d'être force de proposition et d'être à même de répondre aux demandes des clients et des autorités de sûreté, d'identifier les recherches amont et développements nécessaires pour répondre à ces demandes, j'ai mis en place et j'entretiens une gestion de la métrologie répondant aux exigences de la norme ISO/NF 17025, qui a amené l'accréditation COFRAC du laboratoire en 2011, une gestion de l'innovation constante s'appuyant sur des collaborations hors Valduc pour répondre aux nouveaux besoins de mesures. La majorité des nouveaux besoins de mesures exprimés sur le centre de Valduc sont liés à des procédés et produits nouveaux avec des exigences en termes de performances de mesure de plus en plus élevées ce qui fait que chaque nouvelle demande est un nouveau sujet d'étude, soit de recherche, soit de développement.

3.5.2 Accréditation COFRAC

La démarche d'accréditation COFRAC initiée par le laboratoire de mesures nucléaires de Valduc est une démarche volontaire. Cette démarche est rapidement apparu comme un vecteur de crédibilité pour le laboratoire, et surtout, et avant tout, une façon de :

- capitaliser les bonnes pratiques du laboratoire,
- maintenir l'amélioration continue grâce notamment aux audits de surveillance exigés par la norme NF/ISO 17025. Ces « regards extérieurs » maintiennent constante l'attitude interrogative sur « comment faire mieux autrement » tout en ancrant les bonnes pratiques déjà mises en place,
- savoir répondre et mettre en œuvre de façon efficace les preuves factuelles de la capacité d'un moyen de mesure et de la méthodologie associée de traitement des mesures.

L'effet premier de cette démarche a été d'asseoir la crédibilité du centre de Valduc sur sa capacité à évaluer correctement les activités radiologiques présentes dans les

colis de déchets expédiés vers le centre de stockage de surface de l'ANDRA. Il est rapidement apparu que ce projet a forgé une culture métrologique forte de tout le personnel du laboratoire. Cette culture commune, continuellement renforcée par la dynamique du COFRAC, permet au laboratoire d'accroître son expertise, sa force de proposition, sa réactivité à étayer par des preuves robustes les résultats de mesure rendus par le laboratoire. Tous ces points forts contribuent directement à maintenir la confiance du client dans la capacité du laboratoire à quantifier les radionucléides et matières fissiles.

Depuis 6 ans que le laboratoire s'est lancé dans cette démarche, malgré la lourde charge administrative que cette réalisation nécessite, l'état d'esprit qui a animé et anime l'implication dans cette démarche a toujours été, et je le maintiendrais tout au long de mon mandat, de se servir des exigences du COFRAC comme un tremplin permettant de piloter de manière plus efficace la standardisation et l'automatisation des moyens de mesures, la recherche et le développement associés aux nouveaux besoins des clients en répondant aux bonnes questions. L'objectif majeur est bien de mettre au service de l'« efficacité » générale du laboratoire le savoir commun en terme de gestion de la métrologie et des compétences synthétisés dans la norme ISO/NF 17025. Ces notions prennent tout leur sens lorsqu'il s'agit de piloter ses programmes de R&D en mesures.

3.5.3 Réponses aux nouveaux besoins de mesures sur le centre de Valduc

Les besoins en termes de nouveaux moyens de mesures nucléaires non destructives et de méthodologie de traitement associées sont constants. Cette situation est notamment alimentée par la mise en œuvre de procédés nouveaux et de procédés de plus en plus automatisés : les nouveaux procédés peuvent amener la mise en place de nouveaux moyens de mesure tandis que l'automatisation des procédés demande un suivi en ligne quasiment intégré. Dans le premier cas, un procédé nouveau, notamment de traitements de déchets, liquides ou solides, générera des produits finaux nouveaux qu'il faudra caractériser. Dans le second cas, il peut être en effet difficile de concilier automatisation avec prises d'échantillons analysées par contrôle destructif.

Un autre aspect générant une réflexion approfondie et notamment des recherches et développement sur ce qui est communément appelé « l'estimation des incertitudes associées aux résultats de mesure » est les demandes de plus en plus récurrentes et appuyées des autorités de sûreté nucléaires d'apport de preuves et de garanties sur les résultats de mesures nucléaires non destructives fournis par l'exploitant. Cet aspect est actuellement le chantier ouvert de R&D le plus conséquent que j'ai à gérer au sein de mon unité et possédant le plus gros enjeux.

3.5.4 Gestion des collaborations

Le laboratoire ne possède pas la connaissance et les compétences sur tous les périmètres qu'il doit traiter. C'est ainsi que j'ai monté des collaborations sur les sujets de R&D où clairement la compétence requise et le savoir faire sont situés hors du laboratoire.

En interne CEA

Les premières collaboration internes CEA ont porté sur le développement de nouveaux capteurs. Il s'agissait de développer :

- un moyen de localisation de l'émission gamma (gamma caméra) appliquée à la localisation du plutonium en rétention dans un but d'assainissement. Cette collaboration a été menée avec les unités de la Direction de la Recherche Technologique présentes sur le centre du CEA de Saclay,
- un moyen de localisation de l'émission neutronique aussi appliqué à la localisation du plutonium au travers de structures métallique complexes et denses. Cette collaboration a été menée avec les unités de la Direction de la Recherche Technologique présentes sur le centre du CEA de Saclay,
- un moyen de quantification in situ de l'émission alpha des matières fissiles en solution, pour des milieux fortement corrosifs et des activités allant d'une centaine de becquerel par mètre cube à des activités de l'ordre du GBq/m^3 . Cette collaboration a été menée avec les unités de la Direction de la Recherche Technologique présentes sur le centre du CEA de Saclay,
- un poste de mesure neutronique passif par coïncidence pouvant à la fois caractériser des fûts de déchets technologiques de 100 et 200 litres et des colis de déchets issus des opérations d'assainissement/démantèlement, de type tuyauterie, capacités, ... Cette collaboration a été menée avec les unités de la Direction de l'Energie Nucléaire présentes sur le centre du CEA de Cadarache.

Les méthodologies de mesures font aussi partie de ces collaborations puisque, dans ce cadre, il a été développé, avec les unités du CEA de Cadarache :

- une méthodologie de mesure neutronique passive en présence de forts taux de réaction (α, n) perturbateur,
- une méthodologie de dosage du béryllium, en tant que toxique chimique, présents dans des poudres plutonifères,
- une méthodologie de quantification des masses de matières fissiles présentes dans les pots de vitrification issus de la vitrification des effluents très hautement actifs de Valduc.

La dernière collaboration, interne à la Direction des Applications Militaires, que je suis en train monter concerne l'estimation des incertitudes de mesures associées aux résultats de mesures nucléaires que nous rendons. Les compétences mises en

jeu sont les mathématiques appliquées, notamment les méthodes Monte-Carlo, bayésiennes, éventuellement de Kriegerage si les variables s'y prêtent dans le but de déterminer le modèle explicatif permettant de donner analytiquement l'incertitude associée au résultat. Pour aboutir à cela, la mise en œuvre de plans d'expériences sur mesure sera déterminante.

En Externe CEA

Les collaborations externes au CEA sont moins nombreuses et constituent plus des sujets de développement/optimisation que de la recherche amont.

La première collaboration a été réalisée avec une PME proche de Valduc, ARDPI. Cette PME a développé pour nos besoins de mesures un appareil d'estimation de volume de colis (volume max des colis : 30 litres). En effet, les colis de déchets technologiques générés par l'exploitation des ateliers de Valduc sont de formes diverses, placés sous double vinyle. Une fois un tel colis constitué, il est alors difficile d'estimer correctement le volume de ce dernier rapidement avec les contraintes liées à un environnement nucléaire. Une réflexion est en cours avec cette société pour réaliser une imagerie, de type radiographie, de fûts de déchets par un moyen haute fréquence.

Une autre collaboration en cours de montage entre notre laboratoire et le CERN porte sur la mise en œuvre d'une dosimétrie active auprès des réacteurs nucléaires présents sur le site de Valduc.

Chapitre 4

Bilan et perspectives de mon activité d'ingénieur chercheur

Toutes mes activités d'ingénieur chercheur sont axées sur le contrôle non destructif par mesure nucléaire. Pour rappel, la mesure nucléaire non destructive, telle que définie dans ce mémoire, regroupe l'ensemble des techniques de mesure (active ou passive) des émissions radiatives issues des matériaux nucléaires sous forme brute ou contaminants des objets liés au procédé nucléaire où ces matériaux nucléaires ont été mis en œuvre. L'objectif est d'identifier le radionucléide émetteur de la radiation et, dans la majorité des cas, de le quantifier. Les grandeurs de quantification les plus courantes sont l'activité, exprimée en becquerel, ou la masse, exprimée en gramme. Ce type de mesures permet d'obtenir une information sur la nature des matériaux, non seulement au niveau des radionucléides émetteurs caractérisés mais également au niveau de la composition isotopique d'un élément donné. Les mesures nucléaires sont effectuées à l'aide d'outils regroupés sous le terme générique d'instrumentation nucléaire.

Lorsqu'un matériau, à caractériser, se trouve sous forme de série de production (caractéristiques identiques des matériaux entre eux selon des tolérances de fabrication maîtrisées), une mesure « directe » par pesée est généralement mise en œuvre. A contrario, lorsque l'intégrité du matériau initial a été transformée, c'est à dire qu'il a perdu une ou plusieurs, voire toutes ses caractéristiques de série, qu'une partie ou l'ensemble du matériau a été « mélangé » avec d'autres matériaux nucléaires ou non, et qu'il est très difficile voire impossible de déterminer la grandeur d'intérêt (masse ou activité) par mesure « directe », c'est alors que la mesure nucléaire non destructive est mise en œuvre. Cette perte d'intégrité, partielle ou totale, du matériau, ces mélanges de nature physico-chimique variés et présentant de fortes hétérogénéités (de densité apparente de surconteneur, de densité intrinsèque d'objets présents dans le surconteneur, de mélange de nature de

matériaux (métaux avec matières organiques, par exemple), de radionucléides,...) impliquent une grande difficulté de définition, de mise en œuvre et de validation des méthodes de mesures nucléaires non destructives. D'ailleurs, elles sont rarement déployées de façon automatisée sans supervision rapprochée d'un homme de l'art spécialisé uniquement dans ce domaine.

Le but de ces mesures, « directes » ou par mesure nucléaire, est de réaliser l'inventaire exhaustif et complet des matières nucléaires en présence. Cet inventaire est destiné à évaluer les impacts sur la sûreté (criticité, notamment), l'humain (impact radiologique), l'environnement (notamment au travers des déchets nucléaires), la sécurité (pas de détournement de matière), médiatique (l'industrie nucléaire doit prouver sa maîtrise de la radioactivité à tout stade du procédé). Au vu des enjeux associés à l'inventaire, à la complexité des quantifications demandées (mélanges, dispersion de la matière), la comptabilité des matières caractérisées par mesures nucléaires est le cauchemar du responsable du suivi des matières mais le rêve de tout « mesureur nucléaire », car tout objet de ce type est un cas d'étude à part entière pour la mesure nucléaire. Ceci fait de la mesure nucléaire non destructive un domaine d'analyse à part entière et les douze années passées dans ce domaine ont forgées mon expertise. C'est ainsi que j'ai pu mettre en œuvre et/ou développer :

- les techniques de reconstruction tomographique par maximum de vraisemblance,
- le comptage de neutrons retardés issus de photofission dans les actinides présents dans les colis de déchets de grand volume,
- le dimensionnement de postes de mesure neutronique passive et active à l'aide de codes Monte-Carlo 3D de transport de particules,
- la quantification d'activité radiologiques de matières nucléaires par comptage neutronique passif par coïncidence, spectrométrie gamma, spectrométrie alpha,
- les méthodes de correction de matrice par source de transmission neutronique et gamma,
- les méthodes de comptages neutroniques des multiplicités neutroniques,
- la validation de méthode de mesure, notamment grâce à la mise en œuvre de plans d'expérience. Les validations de méthode permettent d'établir les relations entre les entrées et les réponses du processus de mesure mis en jeu tout en évaluant les facteurs impactant sur les réponses et leurs corrélations éventuelles. Elles permettent in fine d'établir l'incertitude associée à la réponse.

Mes premières années d'ingénieur chercheur ont surtout porté sur la définition, le dimensionnement de postes de mesures nucléaires non destructives. Ensuite, mon activité, en plus de la définition et du dimensionnement de poste, s'est orientée vers la définition et l'optimisation de méthodes de mesures associées aux postes

de mesures. Enfin, j'ai complété mon périmètre de compétences par la validation de méthode avec mise en œuvre de plans d'expérience. Je n'ai pas pour autant délaissé la partie amont de la mesure, composée du capteur et de l'électronique associée, même si mon expertise dans le domaine est bien moins poussée que celle dans le reste du processus, puisque j'ai été à l'initiative de collaborations sur de nouveaux capteurs (localisateur neutrons, détecteur silicium avec dépôt diamant), de la mise en place de diagnostic de panne d'électronique de mesure in situ sur le site de Valduc. Cet enchaînement m'a permis d'avoir une vision globale sur l'ensemble du processus de mesure nucléaire non destructive et de toucher à plusieurs à compétences métiers regroupées dans ce processus : technologies des capteurs de radiations, électronique d'acquisition, traitement du signal, physique nucléaire des interactions rayonnements-matière, code de calcul de transport de particules, statistique, métrologie. Ces compétences sont déclinées sur la mesure passive et, dans certains cas, active par spectrométrie gamma, alpha, le comptage neutronique total, coïncident, des multiplicités. De plus, de par l'intégration de nouveaux périmètres d'activité à mon unité, cela m'ouvre de nouvelles perspectives de recherche et développement sur de nouvelles thématiques : la dosimétrie auprès des réacteurs (activation de cibles, thermoluminescence, diodes, ...), le comptage de rayonnement bêta de cibles activées, la calorimétrie. Là encore ces thématiques touchent les mêmes enjeux que ceux de la mesure nucléaire non destructive.

Ce besoin de mesure est en pleine expansion tant pour l'exploitation actuelle des procédés nucléaires que pour celle des futurs procédés dans lesquels il faudra définir, valider et déployer de nouveaux moyens innovants ou encore pour les phases démantèlement/déconstruction de ces procédés. Les principales pistes de recherche et développement qui s'ouvrent dans mon domaine sont :

- en spectrométrie gamma : améliorer les méthodes de quantification des radionucléides et réduire les incertitudes associées. Cet objectif est un chantier ouvert depuis de nombreuses années par la plupart des personnes travaillant sur le sujet. Pour ma part, je me concentre sur la problématique de la quantification des actinides et plus particulièrement des multi-émetteurs. C'est le sujet principal de mes travaux de recherche actuels. Au niveau du capteur, ces travaux portent sur la caractérisation du détecteur (définition de la réponse du détecteur dans l'espace) afin de déterminer exactement les facteurs influents sur la réponse du détecteur et leurs interactions ainsi que sur la modélisation des effets « équivalents¹ » des zones mortes du détecteur et leurs interactions avec les autres facteurs influant sur la réponse. Cette démarche permettra de définir les mesures expérimentales de référence critiques qui servent à recalibrer

1. Ces effets regroupent les pertes de charges dans l'électronique, la collection incomplète des charges dans le semi-conducteur, les zones périphériques où la concentration du dopant bloque la migration des charges

le modèle numérique. Une fois le modèle numérique recalé, celui-ci est la base de l'évaluation du coefficient d'étalonnage permettant la quantification. Au niveau du coefficient d'étalonnage, ces travaux portent sur l'exploitation de toute la physique et de toute l'information contenue dans le spectre gamma afin d'individualiser (en évitant au maximum les hypothèses moyennes d'interprétation par « famille »), d'automatiser la quantification et d'estimer au plus juste les incertitudes associées (les chiffrer sur des bases expérimentales). Pour rappel, la diversité et la complexité de certains objets à caractériser impliquent un traitement « artisanal » - dans le sens où seul un homme de l'art peut effectuer le traitement - et requiert un grand savoir-faire. Enfin, un autre travail portera sur la validation des résultats de compositions isotopiques rendues par les logiciels dédiés de traitement,

- en spectrométrie alpha : mes travaux de recherche associés à cette technique portent sur la mesure in situ, dans les effluents radioactifs, du rayonnement alpha. Les améliorations potentielles liées à cette technique sont prometteuses notamment sur les sujets de la surveillance environnementale et des rejets des émetteurs alpha. En effet, pour atteindre les limites de détection requises, il est nécessaire de recourir à la mesure du rayonnement alpha du fait des probabilités d'émission qui sont optimales. L'enjeu est de valider une technique de mesure actuellement destructive en une technique de mesure non destructive notamment grâce au recours aux codes de calculs de transports Monte-Carlo et au développement de capteurs « immergeables », stables dans le temps et résistants à des conditions extrêmes de mesures (solutions acides, basiques,...). Les plus fortes plus values d'une telle étude porteraient sur l'automatisation de la mesure et donc le temps de réponse associée,
- en comptage neutronique : le sujet de développement en cours est la quantification des masses de matières fissiles via leur émission par fissions spontanées en présence d'une forte émission parasite (α, n). Ce sujet est le fruit d'une étude menée lors d'une collaboration avec un autre laboratoire du CEA, le LMN, qui nous a développé la méthodologie et le logiciel d'exploitation associés. Cette technique est en cours d'évaluation et de déploiement sur le terrain. Nos premiers retours démontrent qu'elle est pertinente pour quantifier les composés chimiques, tels que les composés fluorés, mais aussi les mélanges, tels que plutonium, béryllium, fortement émetteurs (α, n). Sur les premiers essais réalisés, nous avons déjà identifié une amélioration sur l'incertitude liée à ce type de mesure. Un autre sujet d'étude à développer est la mesure de l'uranium, au travers de l'uranium 238. Dans cette configuration aussi, la mise en œuvre de la technique de mesure en présence d'une forte émission parasite (α, n) est à déployer. Enfin, une dernière étude actuellement identifiée, sera la validation de la méthodologie de quantification des masses des matériaux spontanément

fissibles à partir du comptage des singulets, doublets, voir triplets et en utilisant le rendement de détection comme seule donnée d'entrée. Un sujet d'étude complémentaire sur ces techniques est la modélisation des facteurs impactant le résultat de mesure et les interactions potentielles entre ces facteurs,

- en validation globale des techniques de mesures nucléaires : les enjeux liés à cet item dépassent le cadre de la mesure nucléaire, notamment au travers du sujet d'étude de cumul de valeurs unitaires et de leurs incertitudes associées. Cet aspect intervient, bien sûr, lorsque que plusieurs objets, caractérisés par mesure nucléaire, sont regroupés dans un ensemble (un surconteneur ou une unité comptable) et que la somme de chaque valeur de masse ou d'activité est la valeur de l'ensemble. Ce problème n'est pas aussi trivial que l'énoncé le laisse supposé, surtout au niveau de la combinaison de chaque incertitude associée à chaque objet. Ceci est dû au fait de la présence de mesures et d'incertitudes différentes (le cas le plus caractéristique sont les bilans matières). Un autre enjeu de cet item est l'introduction des équations de la physique des interactions rayonnements matière dans les modèles explicatifs des réponses en fonction des entrées et du processus de traitement des opérations de mesure. Une telle approche, si elle s'avère viable, permettrait notamment de s'affranchir du recours systématique au code de calcul de transport Monte-Carlo pour borner -en terme d'incertitude- le résultat de mesure. Nous disposerions alors d'un modèle analytique facilement implémentable. Cette étude pourra être menée sur les techniques de spectrométrie gamma, alpha et, avec réserve, du fait de la physique mise en jeu, de comptage neutronique.

Les thématiques d'études qui suivent sont nouvelles pour moi mais pas totalement étrangères. Elles font partie intégrante des sujets potentiels d'étude du laboratoire. Elles sont :

- en situation post accidentelle de criticité : l'enjeu est de restituer la dose intégrée par les personnes irradiées lors de l'accident de criticité. L'enjeu ne porte pas uniquement sur la dose totale intégrée mais aussi sur la géo-localisation de cette dose sur la personne. Elle conditionne le traitement clinique à dispenser à cette personne. Là aussi intervient la notion de grandeur et d'incertitude associée puisque, de la valeur intégrée, dépendra aussi le traitement appliqué. Tel qu'il est posé ici, le problème indique clairement qu'une solution à étudier est que la dosimétrie de criticité soit directement assujettie à la personne. Il faut aussi disposer des relations numériques qui établiront le lien entre ce qu'a « vu » le détecteur et la dose intégrée réellement. La encore, une validation rigoureuse de la méthode est requise. Sur ce sujet, en France et tel que présenté, il reste tout à définir,
- en dosimétrie réacteur : il s'agit pour cette problématique de déployer et de valider le moyen de dosimétrie en ligne par diodes RADMON, développé par

le CERN. Sur ce sujet, une collaboration est en cours avec le CERN. Actuellement, toute la dosimétrie rendue est traitée a posteriori, une fois l'irradiation terminée et ce, suivant les taux de comptages des cibles activées, jusqu'à deux mois après l'irradiation. L'enjeu est clairement décrit par l'exemple suivant : dans le cas de tenue à l'irradiation ou de comportement vis-à-vis de l'irradiation de matériau, le client, qui demande une fluence neutronique spécifique, ne saura si son matériau a intégré la bonne fluence qu'après l'irradiation terminée. Avec une dosimétrie active, cette fluence sera connue en temps réel et il sera possible de corriger toute dérive éventuelle et d'optimiser la durée d'irradiation,

- calorimétrie : cette technique non destructive de quantification des masses de matériaux nucléaires, basée sur la mesure de la chaleur dégagée par le matériau nucléaire, est très robuste et sert de juge paix lors des quantifications. Toutefois, cette quantification est très longue à obtenir dans le cadre de nos applications (entre 6 et 24 heures), n'est disponible que sur des volumes restreints (30 litres maximum) et est dépendante du résultat de la mesure de composition isotopique obtenu la plupart du temps par spectrométrie gamma. Dans notre unité, nous disposons aussi d'un calorimètre de grand volume (200 litres). Les sujets d'étude associés à ces techniques portent sur la validation de l'ensemble (calorimétrie et prise en compte de l'isotopie) de cette technique de mesure, de la remise en service du calorimètre grand volume et de la validation de ce dernier pour des objets aussi variés que ceux que nous caractérisons par les autres techniques de mesures nucléaires.

Bien sûr, je ne mènerai pas ces projets seul : je fais partie d'une équipe que j'encadre. Mais cela nous promet de nombreuses thématiques de recherche et développement à long terme nécessitant que nous initiions de nombreuses collaborations.

Bibliographie

- [1] *EADS SODERN, GENIE notice d'utilisation, SODERN 4011 143 6934 F, Juillet 1999.*
- [2] énergie nucléaire - technologie du cycle du combustible - déchets, détermination de caractéristiques radioactives de colis de déchets par comptage neutronique passif, norme française nf m 60-306, octobre 1998.
- [3] énergie nucléaire - technologie du cycle du combustible - déchets, recommandations en vue de l'étalonnage d'un poste de mesure pour la détermination de caractéristiques radioactives de colis de déchets par comptage neutronique passif, norme française nf m 60-315, mars 2001.
- [4] évaluation des données de mesure - guide pour l'expression de l'incertitude de mesure, jcgmm, 100 :2008.
- [5] The fitness for purpose of analytical methods - a laboratory guide to method validation and related topics.
- [6] *Los Alamos National Laboratory. MCNPX User's manual. LANL. v2.5. 2005.*
- [7] *Dossier de recommandations pour l'optimisation des mesures neutroniques passives.* CETAMA, 2011.
- [8] N. ENSSLIN & al D. REILLY. Passive nondestructive assay of nuclear materials. Technical report, Los Alamos LA-UR-90732, 1991.
- [9] Mer-Calfati C. De Sanoit J. Procédé de détection utilisant un détecteur alpha électrochimiquement assisté pour la mesure nucléaire en milieu liquide. Rapport technique, Commissariat à l'Énergie Atomique et aux Énergies Alternatives, 2010.
- [10] T. Visonneau F.X. Hugot. Tripoli-4 version 7 notice. Rapport technique, Rapport technique CEA/DEN. Réf RT10-4944/A, 2010.
- [11] Bernard P Garcia B, Saurel N. Définition et validation par simulations du dispositif celina intégré dans la cellule de mesure PROMETHEE 6. Rapport technique, Commissariat à l'Energie Atomique, centre d'étude de Cadarache, Septembre, 2003.

- [12] F. Huynh. *Tomographie Appliquée à la détection des actinides par photofission*. Thèse de doctorat, Université Paris XI, Orsay, 1999.
- [13] Simonato J. Détermination de l'efficacité intrinsèque d'un détecteur GeHP appliquée aux mesures sur déchets nucléaires. Rapport technique, Commissariat à l'Energie Atomique et aux Energies Alternatives, 2011.
- [14] N. Saurel J. Roccaz, M. Juillard. Characterization system for germanium detectors and other developments for gamma spectroscopy applied to nuclear waste characterization. In *2008 IEEE Nuclear Science Symposium Conference*, 15-25 octobre 2008.
- [15] A. Lyoussi. *Dosage, par photofissions induites, de faibles quantités d'actinides dans les déchets radioactifs enrobés*. Thèse de doctorat, Université Blaise Pascal, Clermont-Ferrand II, 1994.
- [16] Mayer M. Validation de l'exploitation des spectres gamma par déconvolution non paramétrique. Rapport technique, Commissariat à l'Energie Atomique et aux Energies Alternatives, 2010.
- [17] Feinberg Max. *La validation des méthodes d'analyse*. 1996.
- [18] Guillot N. Etude de faisabilité d'un traitement automatisé des spectres gamma indépendant d'a priori formulés par l'opérateur. Rapport technique, Commissariat à l'Energie Atomique et aux Energies Alternatives, 2011.
- [19] Saurel N. Rénovation du système de comptage neutronique passif par coïncidence de la cellule n°6 du LEFCA. Rapport technique, Commissariat à l'Energie Atomique, Centre d'Etudes de Cadarache, 2003.
- [20] Saurel N. Descriptif d'évaluation d'activité des colis de déchets 2a. Rapport technique, Commissariat à l'énergie atomique et aux énergies renouvelables, CEN Valuc, 2009.
- [21] SAUREL N. Dossier de contrôle des performances de l'appareil de mesure vvo. Rapport technique, Commissariat à l'Énergie Atomique et aux énergies renouvelables, 2011.
- [22] W.C. HARKER & al N. ENSSLIN. Application guide to neutron multiplicity counting. Technical report, Los Alamos LA-13422-M, 1998.
- [23] J. Allison & al. S. Agostinelli. Geant4-a simulation toolkit. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A*, 506 :250–303, 2003.
- [24] N. Saurel. *Tomographie des actinides par photofission dans des colis de déchets radioactifs de grand volume*. Thèse de doctorat, Université Blaise Pascal, Clermont-Ferrand II, 2002.
- [25] N. Saurel. *Tomographie des actinides par photofission dans des colis de déchets radioactifs de grand volume*. 2002.

- [26] Bernard P Saurel N. Définition et spécifications du poste de mesure neutronique passive par coïncidence de la salle de casse. Rapport technique, Commissariat à l'Energie Atomique, Centre d'Etude Nucléaire de Cadarache, 2004.
- [27] Bernard P Saurel N. Dimensionnement/conception du dispositif de mesure par interrogation neutronique active PACCMAN. Rapport technique, Commissariat à l'Energie Atomique, Centre d'Etude Nucléaire de Cadarache, 2004.
- [28] Capdevila J-M Saurel N. Tomography applied to actinides detection by photofission. In Institute of Electrical and Electronics Engineers Inc., editors, *2000 IEEE Nuclear Science Symposium Conference record*, volume 3, pages 27/21–27/26, 15-20 octobre 2000.
- [29] Huot N. Saurel N., Capdevila J.M. Tomography applied to actinides detection by photofission. In *IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference*, 15-20 octobre.
- [30] Morineau N. Saurel N., Demarais R. Etalonnage et détermination des incertitudes du système de comptage neutronique passif par coïncidence de la cellule n° 6 du LEFCA. Rapport technique, Commissariat à l'Energie Atomique, centre d'étude nucléaire de Cadarache, 2004.
- [31] Vigineix T. *Exploitation des spectres gamma par méthode non paramétrique et indépendante d'a priori formulés par l'opérateur*. Thèse de doctorat, Université de Caen Basse Normandie, 2011.